

THÈSES

PRÉSENTÉES

A LA FACULTÉ DES SCIENCES DE L'UNIVERSITÉ DE LYON

POUR OBTENIR

LE GRADE DE DOCTEUR ÈS-SCIENCES APPLIQUÉES

PAR

Michel VILLAMAYOR

Ingénieur I.N.S.A.

Première Thèse

ÉTUDE DE THERMOCOUPLES POUR LE REPÉRAGE DES HAUTES TEMPÉRATURES

Deuxième Thèse

PROPOSITIONS DONNÉES PAR LA FACULTÉ

Soutenues le 17 Décembre 1966 devant la Commission d'Examen :

MM. Ch. EYRAUD.....	Président
F. DAVOINE.....	} Examineurs
P. PINARD.....	
F. ROSSILLON.....	
P. THOMÉ.....	

LYON
1966

LIBRARY

THE LIBRARY OF THE UNIVERSITY OF CHICAGO

1000 N. EAST AVE. CHICAGO, ILL. 60607

DATE

THE LIBRARY OF THE UNIVERSITY OF CHICAGO

ITS CLASSES AND STUDENTS

LIBRARY

THE LIBRARY OF THE UNIVERSITY OF CHICAGO

THE LIBRARY OF THE UNIVERSITY OF CHICAGO

THE LIBRARY OF THE UNIVERSITY OF CHICAGO

THE LIBRARY OF THE UNIVERSITY OF CHICAGO

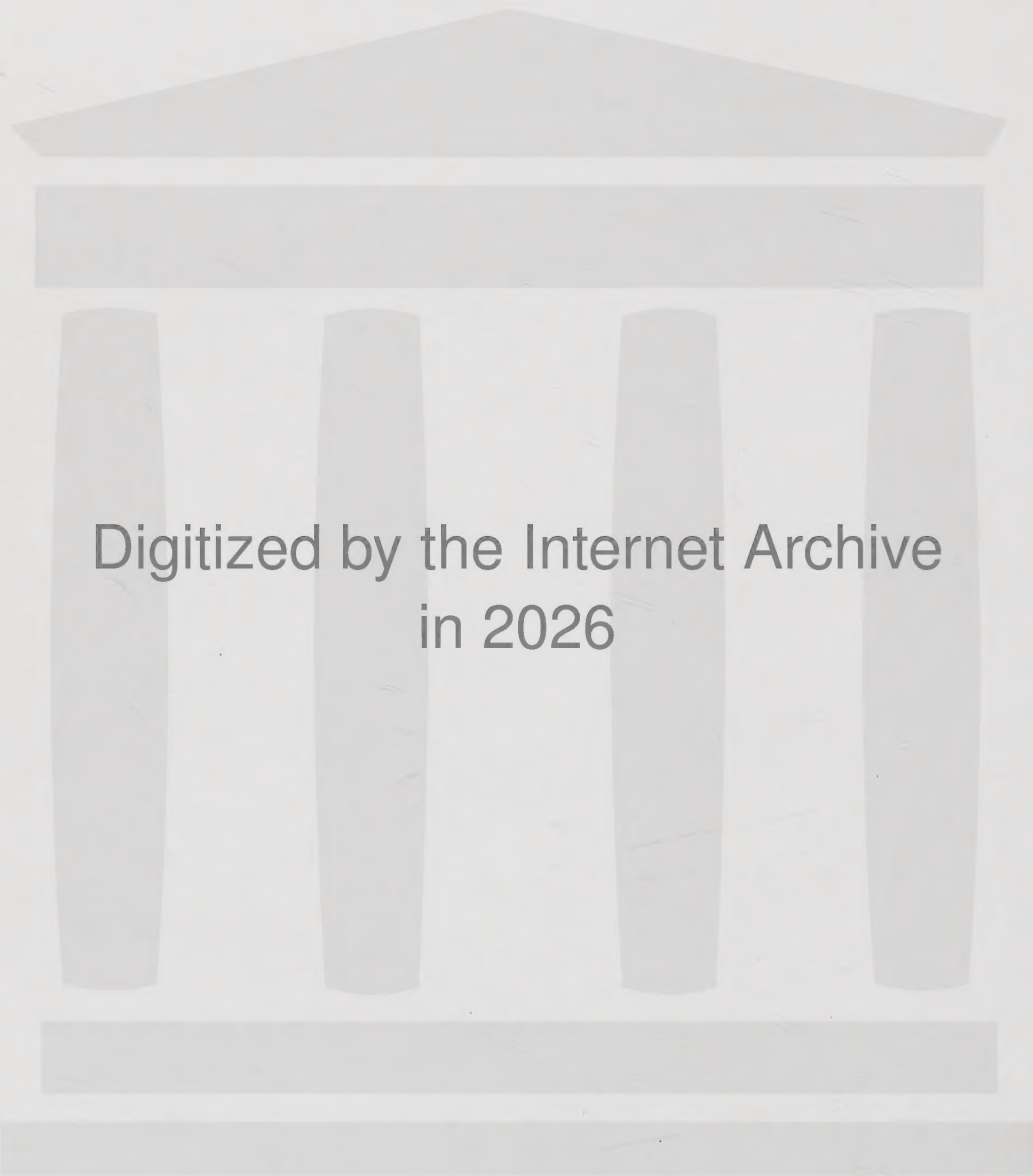
THE LIBRARY OF THE UNIVERSITY OF CHICAGO

THE LIBRARY OF THE UNIVERSITY OF CHICAGO

THE LIBRARY OF THE UNIVERSITY OF CHICAGO

THE LIBRARY OF THE UNIVERSITY OF CHICAGO

THE LIBRARY OF THE UNIVERSITY OF CHICAGO



Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41552626_0028

THÈSES

PRÉSENTÉES

A LA FACULTÉ DES SCIENCES DE L'UNIVERSITÉ DE LYON

POUR OBTENIR

LE GRADE DE DOCTEUR ÈS-SCIENCES APPLIQUÉES

PAR

Michel VILLAMAYOR

Ingénieur I.N.S.A.

Première Thèse

ÉTUDE DE THERMOCOUPLES POUR LE REPÉRAGE DES HAUTES TEMPÉRATURES

Deuxième Thèse

PROPOSITIONS DONNÉES PAR LA FACULTÉ

Soutenues le 17 Décembre 1966 devant la Commission d'Examen :

MM. Ch. BYRAUD.....	<i>Président</i>
F. DAVOINE.....	} <i>Examineurs</i>
P. PINARD.....	
F. ROSSILLON.....	
P. THOMÉ.....	

LYON
1966

Doyens Honoraires

MM. LONGCHAMBOX

MM. MOUSSA
GAUTHIER Henri

Professeurs Honoraires

MM. de LARAMBERGE
SOLLAUD
MENTZER
MOUSSA
JAFFARDEYRAUD Henri
DEJARDIN
VIRET
DUFAY Jean

Doyen

M. BRACONNIER

Assesseurs

M. MESNARD

M. BOLDIN

Professeurs

MM. LONGCHAMBOX, Minéralogie.
 PRETTRE, Chimie industrielle.
 COURT, Chimie-Physique.
 KUHNER, Botanique.
 MALECOT, Mécanique rationnelle et appliquée.
 PARIS, Chimie minérale.
 AUMERAS, Chimie générale II.
 COLONGE, Chimie organique.
 JANIN, Physique générale.
 FLANDRIN, Géologie appliquée.
 BERNARD, Physique industrielle.
 NIGON, Zoologie expérimentale.
 GAUTHIER Henri, Géologie générale.
 WAUTIER, Zoologie.
 CHOPIN, Chimie biologique.
 CUEILLERON, Chimie.
 BRACONNIER, Calcul différentiel et intégral.
 EYRAUD Charles, Chimie-physique appliquée.
 SARAZIN, Physique nucléaire.
 BOLDIN, Microbiologie et Mycologie.
 PERES, Physiologie.

MM. MESNARD, Electronique.
 GRANDMONTAGNE, Physique.
 BOUTILLIER, Minéralogie.
 LAFOUCRIERE, Physique nucléaire théorique.
 DREUX, Chimie organique.
 TEICHNER, Chimie industrielle.
 PAVANS de CECCATTY, Zoologie.
 MERLIN, Chimie analytique.
 DUFAY Maurice, Physique de l'Atmosphère.
 PHILBERT, Physique nucléaire.
 COHEN ADAD, Chimie
 DAVID Louis, Géologie générale.
 CHANEL, Psychophysiologie.
 MAURY, Méthodes Mathématiques de la Physique.
 DEPRAZ, Physique nucléaire.
 GAUTHIER Jean, Chimie.
 GAUME, Physique expérimentale.
 UZAN, Physique.
 LEGAY, Biologie animale.
 LAFOURQUE, Physique.
 GERMAIN, Chimie.

Professeurs sans Chaire

MM. FERON, Mathématiques.
 CHENEVOY, Géologie appliquée.
 GINET, Zoologie.
 ASCH, Physique.
 MICHEL Pierre, Minéralogie.
 Mlle. MAITROT, Physique.
 GEVIN, Géologie générale.
 PONASSE, Mathématique.
 d'INCAN, Physique C.S.U.
 LEFEBVRE, Mathématiques.
 PERNET, Mathématiques.

.CHERY, Physique.
 BERGEON, Physique C.S.U.
 Mlle. GAUTHERON, Chimie biologique.
 DESCOTES, Chimie organique.
 ERBEIA, Physique.
 Mme. ERICSON, Physique générale.
 LEMOIGNE, Botanique.
 MARTEL, Mécanique.
 MATHIEU, Mécanique des fluides.
 MICHEL Georges, Biochimie.

Maîtres de Conférences

MM. PICARD Philippe, Mathématiques.
 DEMARCO, Géologie générale.
 LEBRETON, Biologie végétale.
 DAVID Jean, Biologie animale.
 TOUSSET, Chimie propédeutique.
 FEUVRAIS, Physique-Electricité.
 SCHMITT, Physique C.P.E.M.
 LAURENT, Chimie organique.
 ROT, Mathématique.
 BETHOUX, Mathématique T.M.P.
 Mlle. CALAIS, Mathématique.
 GUSAKOW, Physique.
 Mlle. THOMAS, Chimie

AUBIN, Analyse numérique.
 BUCHWALTER, Mathématique.
 MM. BOUZON, Mathématique C.S.U.
 COSNIER, Psychophysiologie.
 Mlle. LAMOURE, Biologie végétale.
 PORTHAULT, Chimie C.S.U.
 VALLET, Chimie macromoléculaire.
 HAUGAZEAU, Analyse numérique.
 ENAY, Géologie.
 BERTHET, Biologie végétale C.P.E.M.
 BRUN, Biologie animale.
 DELMAU, Physique.
 EL BAZ, Physique-Electricité.

Maître de Conférences Adjoint

M. PIERRON, Chimie.

Conseiller administratif

M. BURNET

Secrétaire Principal Honoraire

M. ROUX

Ce travail a été réalisé dans le Laboratoire de Physique de la Matière de l'Institut National des Sciences Appliquées de Lyon, et dans le Service des Piles du Centre d'Etudes Nucléaires de Grenoble. Je prie Monsieur le Doyen H. LEFEBVRE, Directeur de l'I.N.S.A. de Lyon, Monsieur le Professeur L. NEEL, Directeur du C.E.N. Grenoble, ainsi que Monsieur SALESSE, Chef du Département de Métallurgie du Commissariat à l'Energie Atomique, de trouver ici l'expression de ma respectueuse considération pour leurs apports matériel et financier sans lesquels rien n'aurait été fait.

Je remercie très vivement Monsieur le Professeur Ch. EYRAUD, Directeur du Département de Mécanique de l'I.N.S.A. de Lyon, de me faire l'honneur d'accepter la présidence de la Commission d'Examen.

Je témoignerai ici de ma profonde et sincère gratitude à Monsieur le Professeur F. DAVOINE, maintenant Directeur de l'Ecole Nationale Supérieure de la Métallurgie et de l'Industrie des Mines de Nancy, qui, après avoir dirigé mes études d'Ingénieur, a guidé et suivi mes premiers pas dans la Recherche. Ses nombreux conseils, suggestions et aimables critiques m'ont permis de mener à bien ce travail dans une atmosphère qu'il a su toujours empreindre de cordialité. Monsieur P. PINARD, Maître de Conférences, m'a fait profiter pleinement de son expérience dans les dernières phases de cette étude et je suis heureux de pouvoir lui exprimer ici ma très vive reconnaissance.

Une part importante de ce travail a pu être effectuée grâce à la collaboration de Monsieur F. ROSSILLON, Chef du Service des Piles du C.E.N. Grenoble. Qu'il soit assuré de mes remerciements les plus sincères.

C'est Monsieur P. THOME, Chef de la Section des Techniques Avancées du C.E.N. Saclay, qui a eu la charge de diriger les différentes étapes de cette étude. Qu'il trouve ici l'expression de mes sentiments très reconnaissants.

Je remercie également tous mes camarades et le Personnel du Laboratoire pour la constante collaboration et les témoignages d'amitié qu'ils m'ont toujours apportés.

I N T R O D U C T I O N

Le repérage de hautes températures s'effectue en général de deux manières : soit au moyen d'un pyromètre optique, soit à l'aide de sondes.

La première méthode permet d'atteindre des températures élevées, mais, si son emploi est précieux, il existe de nombreux cas où elle ne peut être utilisée.

Quant à la seconde elle restait, jusqu'à ces dernières années, limitée à un domaine restreint de températures puisque les thermocouples étaient constitués de métaux nobles.

Il a fallu attendre l'amélioration récente des procédés de fabrication des métaux et alliages réfractaires pour qu'il soit possible d'élaborer des thermocouples, robustes et d'encombrement réduit, capables de repérer avec précision des températures très élevées, en particulier celles de fonctionnement des réacteurs nucléaires.

La mesure des forces électromotrices délivrées par de nombreuses combinaisons de métaux et alliages réfractaires a été réalisée dans des laboratoires étrangers et les résultats obtenus montrent que ce sont les alliages Tungstène-Rhénium qui présentent les meilleures caractéristiques thermoélectriques.

Dans ce travail, nous avons étudié le comportement des thermocouples Tungstène pur-Tungstène 26 % Rhénium (W./W. 26 % Re) et Tungstène 5 % Rhénium-Tungstène 26 % Rhénium (W. 5 % Re/W. 26 % Re), de fabrication française (Société J. BOCUZE & C°) destinés au contrôle de la température dans les réacteurs nucléaires.

Les caractéristiques générales de ces thermocouples ont été déterminées au cours de l'étude "hors pile".

En étalonnant un grand nombre d'entre eux, nous avons pu établir les courbes et tableaux d'étalonnage moyen relatifs à chaque type.

Nous nous sommes ensuite efforcé de délimiter les erreurs de repérage résultant de leurs conditions d'utilisation en recherchant leur temps de réponse, leur dérive en fonction du temps ou encore l'influence des chocs thermiques.

Afin de rendre compte, dans une gamme étendue de températures, de l'évolution de ces thermocouples sous irradiation, nous avons mis en oeuvre une série de manipulations dont la description et les résultats font l'objet de l'étude "en pile".

Les phénomènes observés, qui s'interprètent très bien en attribuant un rôle important aux effets provoqués par les transmutations nucléaires, nous ont conduit à proposer un nouveau type de thermocouples constitués d'alliages Molybdène-Niobium.

P R E M I E R E P A R T I E

A - RAPPELS THEORIQUES SUR LA THERMOELECTRICITE

B - LES THERMOCOUPLES

A - R A P P E L S T H E O R I Q U E S S U R

L A T H E R M O E L E C T R I C I T E

I. LES EFFETS THERMOELECTRIQUES

1° - L'effet Seebeck (1821)

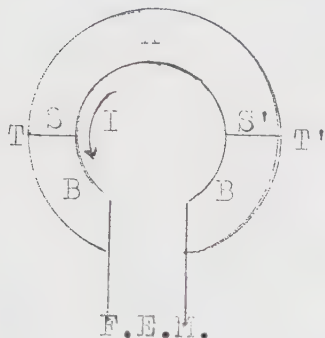


Figure 1

Considérons le circuit schématisé par la figure 1 et constitué de deux conducteurs homogènes A et B en contact suivant deux surfaces S et S' maintenues, respectivement, aux températures T et T'.

En circuit ouvert, on constate l'apparition d'une F.E.M. fonction de la nature des conducteurs et des températures T et T'. Cette F.E.M. provoque, en circuit fermé, le passage d'un courant qui s'inverse lorsqu'on intervertit T et T'.

Nous désignerons la F.E.M. par $E_T^T(A,B)$, avec $T > T'$, et le courant allant dans le sens indiqué sur la figure.

2° - L'effet Peltier (1834)

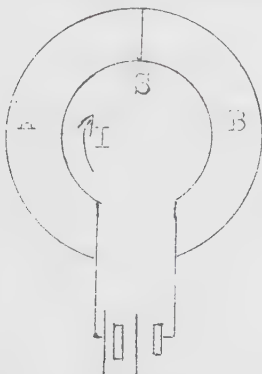


Figure 2

Soit un circuit électrique constitué par deux conducteurs homogènes A et B, en contact suivant une surface S, et maintenus à une température T, dans lequel on fait circuler un courant d'intensité I (figure 2). On observe, à la surface S, un dégagement ou une absorption de chaleur tel que :

$$\frac{dQ}{dt} = P_{ab} \cdot I$$

P_{ab} est appelé coefficient de Peltier, ou tension de Peltier, et dépend de la nature des conducteurs et de T .

3° - L'effet Thomson

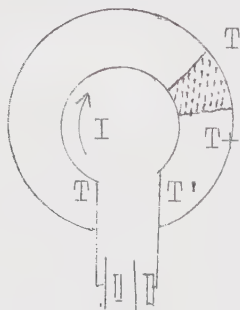


Figure 3

Envisageons un conducteur homogène parcouru par un courant d'intensité I , et dont les extrémités sont maintenues à des températures T et T' (figure 3). Dans une région où la température passe de T à $T + \Delta T$, on constate un dégagement ou une absorption de chaleur tel que :

$$\frac{dQ}{dt} = h \cdot I \cdot \Delta T$$

Dans l'ensemble du conducteur, on aura donc :

$$\frac{dQ}{dt} = I \cdot \int_{T'}^T h \cdot dT$$

h désignant le coefficient de Thomson.

Afin de simplifier les calculs ultérieurs, nous conviendrons de noter H_T^T , l'intégrale $\int_{T'}^T h \cdot dT$ qui est homogène à une tension et que nous désignerons sous le nom de "tension de Thomson".

II. INTERPRETATION DES EFFETS THERMOELECTRIQUES

RELATIONS DE THOMSON

Dans un conducteur où existent, simultanément, un courant électrique (intensité I), un gradient de température ($\text{grad } T$) et un gradient de structure ($\text{grad } f$, fonction de la concentration en électrons libres et du gradient de température), les équations d'écoulement électrique et thermique s'écrivent, respectivement :

$$(1) \quad I = A \cdot \text{grad } f + B \cdot \frac{\text{grad } T}{T}$$

$$(2) \quad K = B. \text{ grad } f + C. \frac{\text{grad } T}{T}$$

L'équation (1) peut se mettre sous la forme :

$$(3) \quad \text{grad } f = e(\rho \cdot I + S. \text{ grad } T)$$

avec :

$-e$: charge de l'électron,

ρ : résistivité du conducteur,

S : pouvoir thermoélectrique absolu du conducteur.

Il est intéressant de noter que Mott (7) a calculé l'expression reliant le pouvoir thermoélectrique absolu S d'un métal pur à ses caractéristiques énergétiques.

$$S = \frac{\pi^2 \cdot k^2 \cdot T}{3e} \left[\frac{d \text{ Log } \rho(E)}{dE} \right]_{E = E_F}$$

k : constante de Boltzmann

E_F : énergie de Fermi

Formule que Domenicalli (8) a étendue, par la suite, au cas des alliages.

On démontre que la quantité de chaleur thermoélectrique dégagée par unité de volume et dans l'unité de temps est égale à :

$$(4) \quad \frac{dQ}{dt} = T.I. \text{ grad } S$$

1° - Effet Seebeck

L'équation (3) appliquée au circuit de la figure 1 fournit la valeur du pouvoir thermoélectrique du thermocouple ainsi constitué.

$$(5) \quad \frac{dE}{dT} = S_a - S_b$$

2° - Effet Peltier

Dans le cas du circuit schématisé par la figure 2, l'identification des expressions de la chaleur thermoélectrique permet de calculer la tension de Peltier :

$$(6) \quad P_{ab} = T(S_b - S_a)$$

La combinaison des équations (5) et (6) conduit à :

$$(7) \quad \frac{dE}{dT} = - \frac{P_{ab}}{T}$$

égalité reliant le pouvoir thermoélectrique au coefficient de Peltier, et désignée sous le nom de "seconde relation de Thomson".

3° - Effet Thomson

En raisonnant de la même manière que ci-dessus, nous obtenons le coefficient de Thomson appliqué au circuit de la figure 3 :

$$h = T \frac{dS}{dT}$$

Cette équation, étendue au circuit constituant un thermocouple, devient en tenant compte de (5) :

$$(8) \quad h_a - h_b = T \frac{d^2E}{dT^2}$$

4° - Expression de la F.E.M. d'un thermocouple

En fonction des tensions de Peltier et de Thomson, la combinaison des équations précédentes fournit l'expression de la F.E.M. délivrée par un thermocouple encore appelée "première relation de Thomson":

$$E_{T'}^T(A,B) = P_{ab}(T) - P_{ab}(T') + H_{T'}^T(B) - H_{T'}^T(A)$$

Il faut remarquer que (8) impose à E une variation non linéaire en fonction de la température. En effet, on constate expérimentalement que la courbe $E = f(T)$ est d'allure parabolique. C'est pourquoi on a coutume de représenter la F.E.M. d'un thermocouple par une équation de la forme :

$$E = a(T - T') + b(T^2 - T'^2) + c(T^3 - T'^3) + \dots$$

Nous rappelons que, par convention, dans $E_{T'}^T(A,B)$, $T > T'$, et que, de plus, A désigne le conducteur ayant le pouvoir thermo-électrique absolu le plus élevé.

III. LOIS DES EFFETS THERMOELECTRIQUES

1° - Loi des chaînes métalliques

La somme des effets Peltier pour une chaîne métallique à température uniforme est nulle :

$$P_{ab} + P_{bc} + \dots + P_{na} = 0$$

ou encore :

$$P_{ab} = P_{an^{\circ}} + P_{n^{\circ}b} = P_{an^{\circ}} - P_{bn^{\circ}}$$

Pour l'effet Seebeck, cette loi se traduit par :

$$E_{T'}^T(A,B) = E_{T'}^T(A,N_o) - E_{T'}^T(B,N_o)$$

Si l'on connaît la valeur de l'effet Seebeck de deux métaux par rapport à un métal de référence, cette relation montre qu'il est possible de déduire la F.E.M. délivrée par le couple constitué de ces deux métaux.

2° - Loi des températures intermédiaires

Dans un circuit formé d'un même métal, on peut décomposer les tensions de Thomson de telle manière que :

$$H_{T^{\circ}}^T = H_{T'}^T + H_{T''}^{T'} + \dots + H_{T^n}^{T^{n-1}}$$

Il en résulte pour l'effet Seebeck que :

$$E_{T^0}^T(A,B) = E_T^T(A,B) + E_{T^0}^{T'}(A,B) = E_T^T(A,B) - E_T^{T^0}(A,B)$$

Remarque :

..... Afin d'interpréter l'effet Seebeck, certains auteurs introduisent les effets Volta et de température, liés à l'existence de tensions électromotrices à l'intérieur des conducteurs.

Rappelons uniquement que ces effets, qui contiennent implicitement les effets Peltier et Thomson, obéissent aux lois précédentes et que leur somme conduit à l'effet Seebeck.

IV. PRINCIPES D'UTILISATION DES THERMOCOUPLES

Si, dans le circuit de la figure 1, on maintient la surface S' à une température de référence T^0 (0°C par exemple), la mesure de la F.E.M. permettra de déduire la température T, une fois déterminée par étalonnage la fonction $E_{T^0}^T(A,B)$.

Par ailleurs, la loi des températures successives nous autorise à ouvrir le circuit en un point quelconque, en l'occurrence S', pour mesurer la F.E.M., à condition que les deux surfaces en regard ainsi obtenues se trouvent à la même température. Nous aurons, de cette manière, constitué un thermocouple dans sa forme d'utilisation la plus simple.

1° - Dispositif de mesure

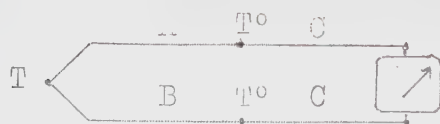


Figure 4

Comme l'instrument de mesure ne peut être porté à la température de référence (0°C), on le relie au thermocouple, comme l'indique la figure 4, à l'aide de conducteurs identiques.

L'introduction, dans le circuit, de ces fils de liaison n'apporte aucune modification à la F.E.M. du thermocouple, si l'on suppose que ces derniers et les matériaux constituant l'appareil de mesure sont de même nature ou, tout simplement, à la même température.

2° - Correction de soudure froide

Aux bornes d'un thermocouple dont la soudure froide est à une température T' différente de la température de référence T^0 avec laquelle il a été étalonné, on mesure $E_{T'}^T$, telle que :

$$E_{T'}^T = E_{T^0}^T - E_{T^0}^{T'}$$

Si, à la valeur mesurée, on ajoute la F.E.M. correspondant à la température T' , la quantité ainsi obtenue permet de repérer la température de la soudure chaude sur la courbe $E_{T^0}^T = f(T)$.

3° - Compensation de soudure froide

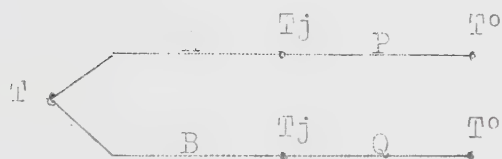


Figure 5

Il est fréquent que l'on soit amené à prolonger le thermocouple au moyen de matériaux (P et Q) très différents de ceux qui le constituent depuis une jonction dont la température T_j est presque toujours plus élevée que la température de référence T^0 .

Un tel circuit, représenté sur la figure 5, délivre une F.E.M. E , que nous décomposons en tensions Peltier et Thomson :

$$E = P_{qp}(T^0) + H_{Tj}^{T^0}(P) + P_{pa}(Tj) + H_T^{Tj}(A) + P_{ab}(T) + H_{Tj}^T(B) \\ + P_{bq}(Tj) + H_{T^0}^{Tj}(Q)$$

En appliquant la loi des métaux intermédiaires, il vient :

$$P_{pa}(T_j) = P_{pq}(T_j) + P_{qa}(T_j) \quad \text{et} \quad P_{bq}(T_j) = P_{ba}(T_j) + P_{aq}(T_j)$$

et, en portant dans l'expression de E :

$$E = \left[P_{ab}(T) - P_{ab}(T_j) + H_{T_j}^T(B) - H_{T_j}^T(A) \right] + \left[P_{pq}(T_j) - P_{pq}(T^\circ) + H_{T^\circ}^{T_j}(Q) - H_{T^\circ}^{T_j}(P) \right]$$

Le premier terme entre crochets représente $E_{T_j}^T(A,B)$, le second $E_{T^\circ}^{T_j}(P,Q)$, si bien que :

$$E = E_{T^\circ}^T(A,B) - \left[E_{T^\circ}^{T_j}(A,B) - E_{T^\circ}^{T_j}(P,Q) \right] = E_{T^\circ}^T(A,B) - \Delta E$$

ΔE étant la correction à apporter dans le cas où les conducteurs P et Q sont quelconques. Par contre, si le choix des matériaux est tel que $\Delta E = 0$, nous aurons alors réalisé la compensation de soudure froide.

Ainsi, dans l'hypothèse où le thermocouple constitué par les matériaux P et Q délivre la même F.E.M. que le thermocouple (A,B) entre T_j et T° , on mesurera bien $E = E_{T^\circ}^T(A,B)$ aux bornes du circuit de la figure 5.

On peut également démontrer que, pour $\Delta E = 0$, $E_{T^\circ}^{T_j}(A,P) = E_{T^\circ}^{T_j}(B,Q)$.

B - L E S T H E R M O C O U P L E S

I. CHOIX DES THERMOCOUPLES

Parmi les très nombreuses combinaisons réalisables de métaux et alliages, seules quelques unes sont susceptibles d'être utilisées pour élaborer des thermocouples permettant le repérage précis et efficace des températures.

En effet, de telles combinaisons doivent :

- délivrer, dans une gamme étendue de température, une F.E.M. aussi élevée et linéaire que possible,
- présenter une faible résistivité électrique et une excellente conductivité thermique,
- posséder, pour un encombrement minimum, une bonne résistance mécanique,
- être, enfin, constituées de matériaux facilement élaborés, afin d'assurer la reproductibilité des lots de fabrication...

Par ailleurs, durée de vie, stabilité, fidélité des thermocouples sont fréquemment liées aux conditions dans lesquelles ils sont utilisés ; par exemple : leur réactivité vis-à-vis de certains composés chimiques conduit à prendre des précautions, voire à interdire leur emploi auprès de ceux-ci ; de même, les cycles thermiques provoquant des transformations métallurgiques (recristallisation, trempe, etc) au sein des fils contribuent à faire varier la résistivité donc la F.E.M.

II. LES THERMOCOUPLES DE METAUX & ALLIAGES REFRACTAIRES

Le repérage de températures jusqu'à 2300°C au moyen de thermocouples nécessite l'emploi d'éléments à point de fusion très élevé, c'est-à-dire les métaux réfractaires (essentiellement le Tungstène, le Rhénium, le Molybdène, le Niobium, le Tantale) et leurs alliages. Des études systématiques ont été entreprises (9 à 17) afin de rechercher, parmi ces matériaux, les combinaisons susceptibles de satisfaire le mieux possible aux critères que nous venons d'énoncer.

Il faut, toutefois, noter que des thermocouples à base de Graphite (Graphite/Graphite boré) ont été élaborés pour les mêmes domaines d'application (18). Mais, si les F.E.M. qu'ils délivrent sont très élevées, leur emploi reste limité par suite de leurs fragilité et encombrement excessifs, et en raison de la trop grande dispersion d'origine thermoélectrique qu'ils présentent.

1° - F.E.M. - Domaine d'application

La figure 6 représente les variations, en fonction de la température, de la F.E.M. délivrée par différents types de thermocouples à base de réfractaires et par le couple Pt/Pt. 10 % Rh qui reste le plus employé pour des températures inférieures. La comparaison de ces courbes justifie le choix des alliages Tungstène-Rhénium : en effet, on constate que jusqu'à 2300°C les F.E.M. les plus élevées et linéaires sont obtenues avec les combinaisons W/W. 26 % Re et W 5 % Re/W 26 % Re.

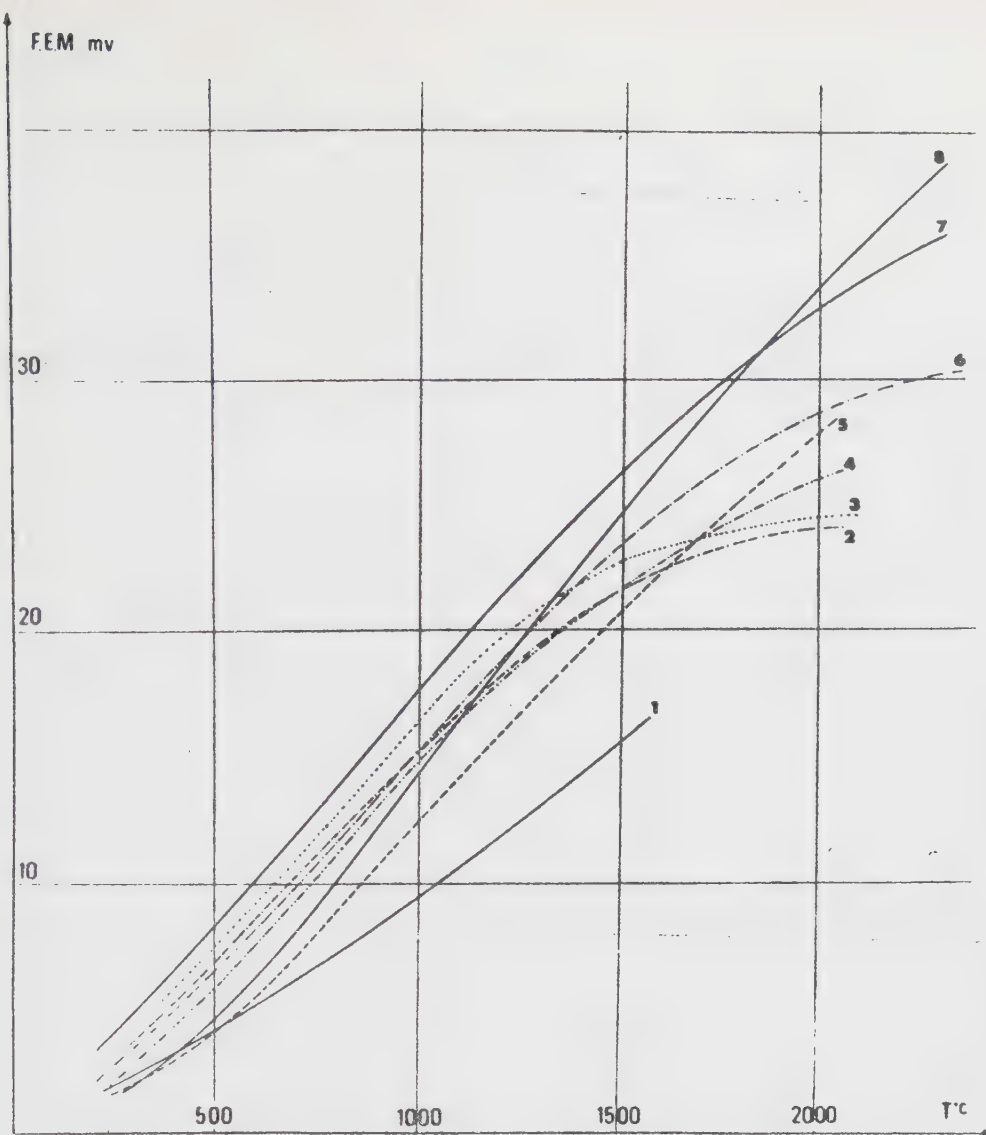


FIGURE 6. COURBES $E_{mv} = f(T^{\circ}C)$

(1): Pt/Pt.10%Rh ; (2): Mo/Nb ; (3): Mo/Re ;
 (4): Mo/Mo.50%Re ; (5): W/Nb ; (6): W/Re ;
 (7): W.5%Re/W.26%Re ; (8): W/W.26%Re .

2° - Les conditions d'utilisation

En l'absence de flux neutroniques dont l'influence fera l'objet d'un chapitre ultérieur, ce sont surtout les propriétés chimiques et mécaniques des métaux et alliages réfractaires qui conditionnent leur utilisation en tant que thermocouples.

D'une part, ces substances doivent être employées soit en atmosphère réductrice (sauf pour le Tantale et le Niobium) ou inerte, soit sous vide ($< 10^{-3}$ mm Hg) par suite de leur grande réactivité chimique. De plus, celle-ci limite leur séjour dans les atmosphères carburées. D'autre part, la fragilité de ces matériaux sous forme de fils à l'état cristallisé, principalement le Tungstène pur, exige beaucoup de soins et de précautions pour leur manipulation.

3° - Constitution des thermocouples

L'élaboration relativement aisée des alliages réfractaires permet de les obtenir soit en fils de petit diamètre (quelques centièmes de millimètre au minimum) soit en tubes de faible section (1 mm x 0,7 mm), et de constituer ainsi des thermocouples d'encombrement réduit.

L'isolement électrique des fils doit être assuré par un matériau possédant des caractéristiques particulières dans tout le domaine de température envisagé. En effet, il faut qu'il ait une très grande résistivité alliée à une excellente conductivité thermique, ainsi qu'une bonne comptabilité chimique avec les alliages en présence. Ces conditions sont généralement réalisées avec les oxydes réfractaires tels que la thorine (ThO_2), la magnésie (MgO), la zircone (ZrO_2), l'alumine (Al_2O_3) et la glucine (BeO) ; la comparaison de leurs mérites respectifs (19) a motivé le choix de cette dernière pour la plupart des cas.

Compte tenu de ces considérations, les thermocouples se présentent habituellement sous trois formes dont les sections sont schématisées sur la figure 7.

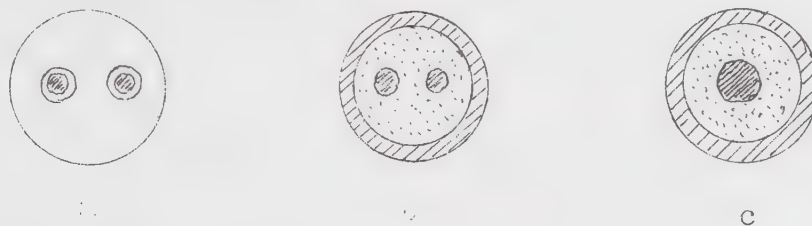


Figure 7

- a) en fils nus, de relativement gros diamètre (quelques dixièmes de millimètre), isolés par des perles bifilaires en réfractaire,
- b) sous gainage étanche en métal réfractaire (Molybdène, Tantale ou Niobium), différent des matériaux composant le thermocouple lui-même, et dont le diamètre est généralement compris entre 1 et 2 mm,
- c) en gaine coaxiale (en ce cas, la gaine constitue l'une des branches du thermocouple) permettant un encombrement encore plus réduit.

Dans les deux dernières présentations, l'isolement électrique est assuré par de la glucine préalablement dégazée à haute température et réduite à l'état de poudre très tassée. Par ailleurs, la gaine doit être exempte de tout composé chimique risquant d'altérer la pureté de l'isolant.

III. LES THERMOCOUPLES D'ALLIAGES TUNGSTENE-RHENIUM

Avant d'aborder l'étude proprement dite des thermocouples d'alliages Tungstène-Rhénium, rappelons brièvement les caractéristiques spécifiques de ces matériaux.

1° - Composition

L'analyse chimique des métaux de base décèle la présence d'impuretés dont la teneur n'excède pas 0,01 % et qui sont essentiellement du Molybdène, du Fer, de l'Aluminium, de l'Oxygène et du Carbone (13).

Par ailleurs, les compositions en Tungstène et en Rhénium sont les suivantes :

<u>Dénomination</u>	<u>Teneur (% en poids)</u>
W	99,95 % de Tungstène
W. 5 % Re	5,3 % de Rhénium
W. 26 % Re	27,4 % de Rhénium

2° - Diagramme d'équilibre Tungstène-Rhénium

Le diagramme d'équilibre (20) représenté par la figure 8 fait apparaître une phase solide β limitée à 28 % de Rhénium, dans laquelle sont contenus les alliages étudiés, et qui se conserve jusqu'à une température d'environ 3000°C.

3° - Propriétés physiques et mécaniques

Si les propriétés du Tungstène pur sont bien connues, il n'en est pas de même de celles de ses alliages avec le Rhénium. Ce n'est que très récemment (21)(22) que certaines d'entre elles ont été déterminées.

Toutefois, on sait que les alliages de Tungstène-Rhénium ont des propriétés mécaniques supérieures (résistance à la rupture, élasticité, fragilité, etc) au Tungstène pur, d'autant plus marquées que le pourcentage en Rhénium est élevé (tout du moins dans la phase β). C'est pourquoi on utilise du W. 5 % Re à la place du Tungstène pur pour constituer ce type de thermocouple.

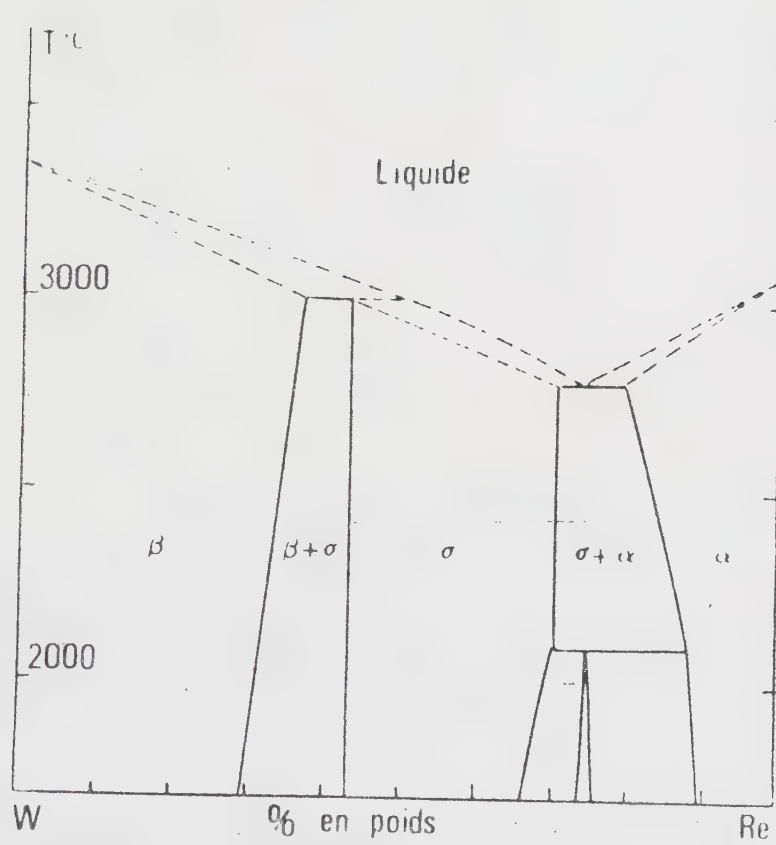


FIGURE 8. DIAGRAMME D'EQUILIBRE W - Re

Le coefficient de diffusion, qui conditionne en partie la stabilité des thermocouples constitués d'alliages, a été mesuré pour le Tungstène et le Rhénium dans le Tungstène jusqu'à 3200°C (23). Les valeurs déterminées à l'aide de traceurs radioactifs de ces éléments sont les suivantes:

$$D(W/W)_{\text{cm}^2/\text{sec}} = 43 \exp(-153/RT)$$

$$D(Re/W)_{\text{cm}^2/\text{sec}} = 275 \exp(-163/RT)$$

Pour des températures d'environ 2600°C, ces coefficients sont, dans les deux cas, voisins de $2.10^{-10} \text{ cm}^2/\text{sec}$.

4° - Constitution des thermocouples étudiés

La fabrication de thermocouples du type de la figure 7c n'ayant été que très récemment mise au point pour les alliages de Tungstène-Rhénium (gaine en W. 26 % Re, âme en W. 5 % Re), seuls les deux types représentés par les figures 7a et 7b ont fait l'objet de notre étude :

- thermocouples de fils nus de diamètre : 0,3 mm, 0,5 mm et 0,8 mm dont la soudure chaude est réalisée à l'arc à mercure,
- thermocouples gainés Tantale ou Niobium, dont les dimensions sont reportées ci-après :

<u>Ø_{ext} gaine</u>	<u>Ø_{int} gaine</u>	<u>Ø fils</u>	<u>Longueur maximum</u>
1,8 mm	1,5 mm	0,30 mm	1 m
1,3 mm	1,0 mm	0,20 mm	1 m

La soudure des fils et, éventuellement, la fermeture de la gaine dans la partie chaude sont effectuées par soudure à l'arc sous argon.

D E U X I E M E P A R T I E

ETUDE DES THERMOCOUPLES D'ALLIAGES TUNGSTENE-RHENIUM

"HORS PILE"

ETUDE "HORS PILE"
-O-O-O-O-O-O-O-O-O-O-O-O-O-O-O-O-

A - ETUDES PREALABLES

I. DISPOSITIF EXPERIMENTAL

Le principe général de la méthode mise en oeuvre pour étudier les thermocouples est le suivant (30) :

a) Obtention des températures élevées : le thermocouple se trouve dans une enceinte réfractaire assimilable à un corps noir, située au coeur d'un four atteignant des températures d'environ 2300°C sous vide moléculaire.

b) Repérage des températures : celui-ci est assuré

- entre 0° et 1400°C, par un thermocouple étalon Pt./Pt. 10 % Rh,
- entre 1050° et 2300°C, par pyrométrie optique,
- par points fixes (solidification de corps purs) dans tout le domaine de température.

c) Mesure des F.E.M. : on procède par la méthode d'opposition, soit au moyen d'un enregistreur (MECI, type Speedomax à plusieurs voies), soit à l'aide d'un millivoltmètre-potentiomètre (MECI, type ESPM).

1° - Description et caractéristiques du four I

Le four décrit ici, et dont une vue écorchée est représentée par la figure 9, a essentiellement été utilisé pour l'étude statistique des thermocouples et de leur stabilité dans le temps.

a) L'élément chauffant (figure 10)

L'élément chauffant est réalisé en fil de Tungstène ($\varnothing$: 5 mm) enroulé en double hélice afin d'en faciliter la dilatation et éviter les effets de champ.

Le volume intérieur utilisable a les dimensions suivantes : diamètre 45 mm, hauteur 85 mm. Les arrivées de courant sont assurées par des tiges en Molybdène ($\varnothing$ 12 mm) fixées à des passages étanches, coulissants, et refroidis par circulation d'eau.

b) Le creuset

A l'intérieur du résistor, on place la cellule isotherme constituée d'un creuset en graphite maintenu par une plaque de Tantale. Un trou latéral ($\varnothing$: 4 mm) permet l'observation du rayonnement issu de ce corps noir.

c) Les écrans thermiques

Autour de l'élément chauffant sont disposés quatre écrans cylindriques en Molybdène, entourés d'un écran en acier inoxydable.

En cours d'opération, la température du premier écran doit prendre la même valeur que celle du creuset : redoutant des déformations mécaniques, quatre bandes de Tungstène rivées longitudinalement assurent sa rigidité.

Dans les parties supérieures et inférieures, on réalise l'isolement thermique au moyen de plaques circulaires en Molybdène à bords repoussés dans lesquels viennent se loger les écrans latéraux.

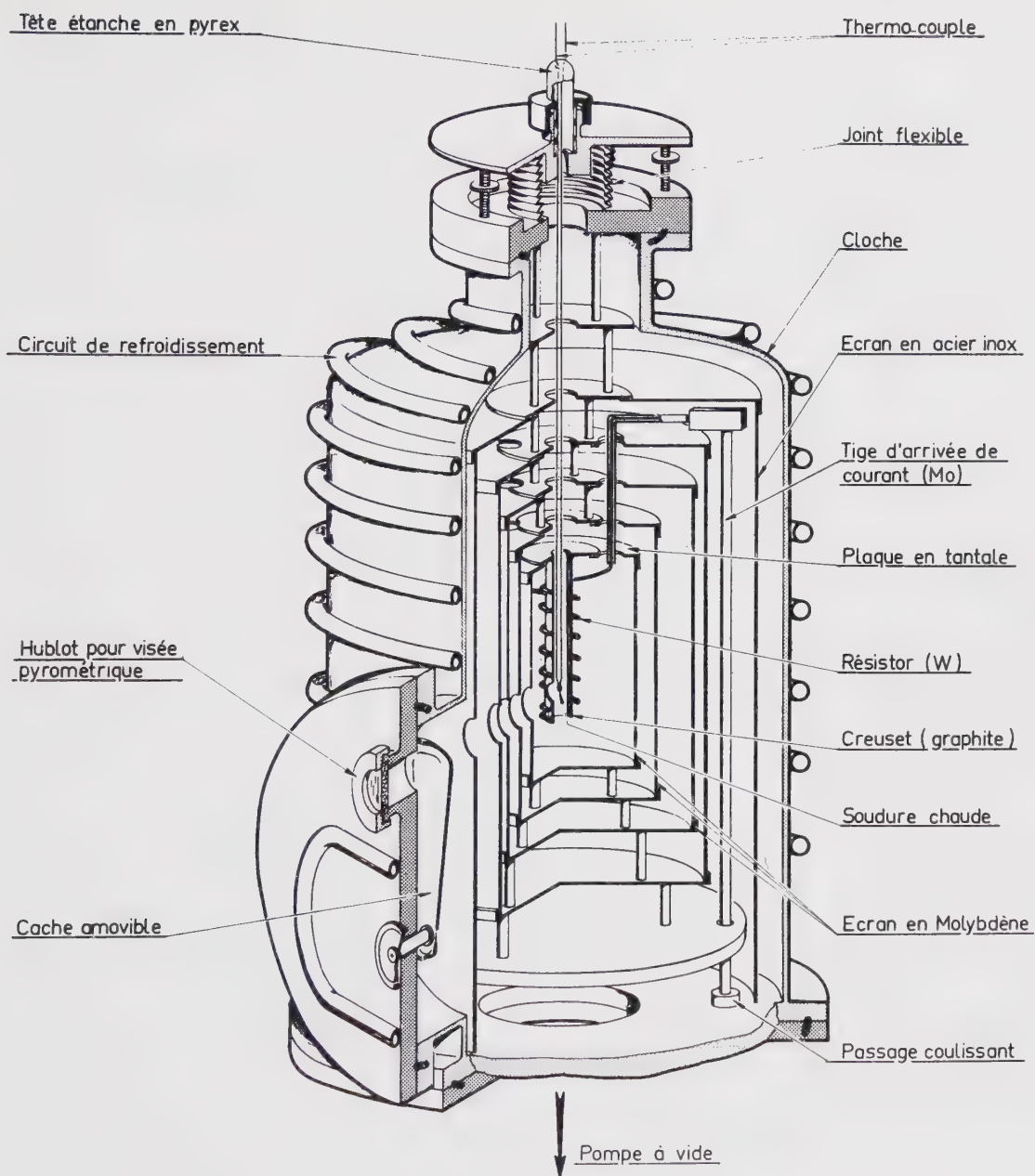


Figure 9 : Vue écorchée du four I.

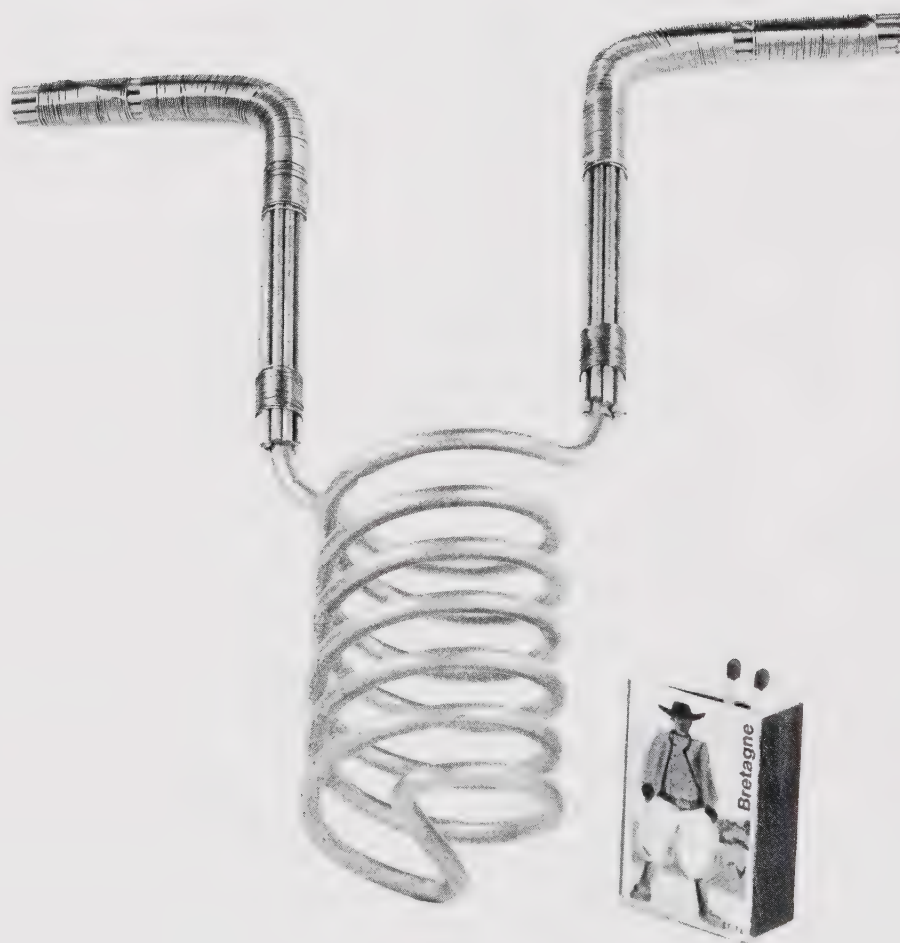


Figure 10 : Elément chauffant du four I.

Ces écrans sont supportés par une plaque de Cuivre refroidie de l'intérieur par circulation d'eau.

d) L'enceinte extérieure

Une cloche en Acier refroidie par circulation d'eau contient les éléments que nous avons décrits.

Les observations au pyromètre optique sont effectuées à travers un hublot en verre Pyrex. Afin d'éviter la pollution de sa surface, un cache escamotable qu'on enlève seulement le temps nécessaire à la visée a été aménagé à l'intérieur de l'enceinte.

e) Le groupe de pompage

Le four est installé sur un banc de pompage comprenant une pompe primaire à palettes et une pompe à diffusion d'huile qui permet d'obtenir, même lors des dégazages à haute température, une pression inférieure à 10^{-3} mm Hg.

f) L'alimentation électrique

Un auto-transformateur suivi d'un transformateur abaisseur de tension alimentent le résistor. La souplesse et la précision d'un tel dispositif assurent une stabilité suffisante pour réaliser l'équilibre thermique à n'importe quelle température.

g) Caractéristiques électriques et thermiques du four

La mesure de la tension entre les passages refroidis constituant les arrivées de courant et le relevé de l'intensité qui traverse le résistor nous ont permis de traduire (figure 11) les variations de la puissance consommée par le four en fonction de la température de la cellule isotherme. On doit remarquer

qu'à 2350°C la puissance, de 15 kVA correspond à une intensité de 500 A.

La courbe représentée par la figure 12, illustrant l'évolution de la température de la cellule en fonction du temps après coupure du courant, met en évidence l'inertie thermique du four.

2° - Installation du thermocouple

Il est indispensable de pouvoir introduire dans le four le thermocouple à étudier et, éventuellement, le thermocouple de référence, en déplaçant le minimum d'éléments. Dans ce but, le thermocouple, isolé par des perles réfractaires, est préalablement monté sur un tube de verre rendu étanche et fixé, au moyen de bagues métalliques et joints en néoprène, sur une pièce placée au sommet de l'enceinte.

Une membrane flexible en Tombac assure le déplacement vertical et latéral du thermocouple. Ce dispositif nous a d'ailleurs permis de constater l'excellente homogénéité de température à l'intérieur du creuset.

Les thermocouples gainés, par suite de leur constitution, exigent un dispositif de liaison particulier, schématisé sur la figure 13.

3° - Mesure de la F.E.M. Précision

A l'extérieur de l'enceinte, les fils des thermocouples sont fixés à deux petits blocs de Cuivre immergés dans la glace fondante par l'intermédiaire de tubes à essais contenant de l'huile de vaseline. Des cordons en Cuivre les relient à l'appareil de mesure.

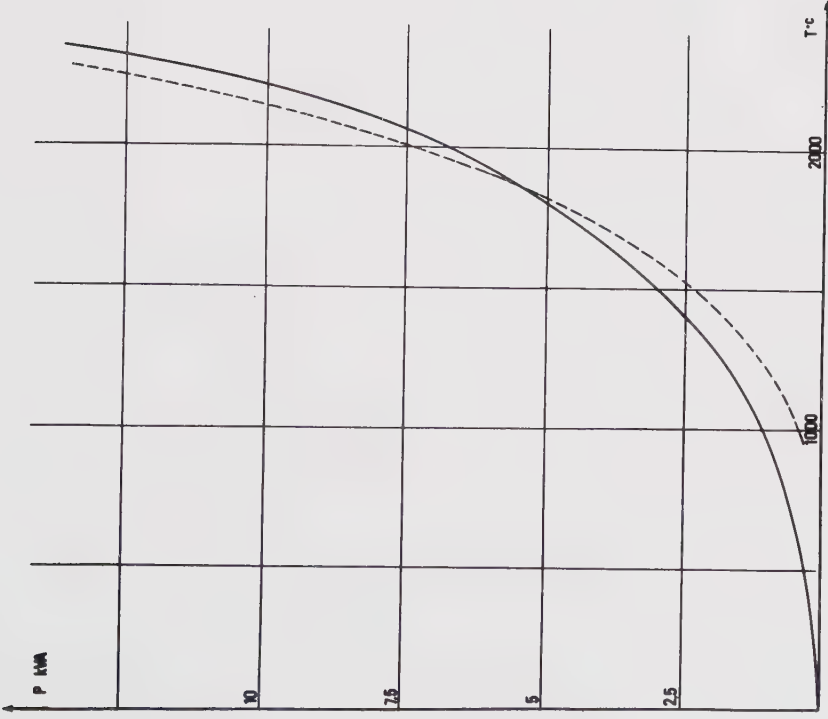


Figure 11 : — Puissance réelle consommée.
 -----Puissance théorique rayonnée.

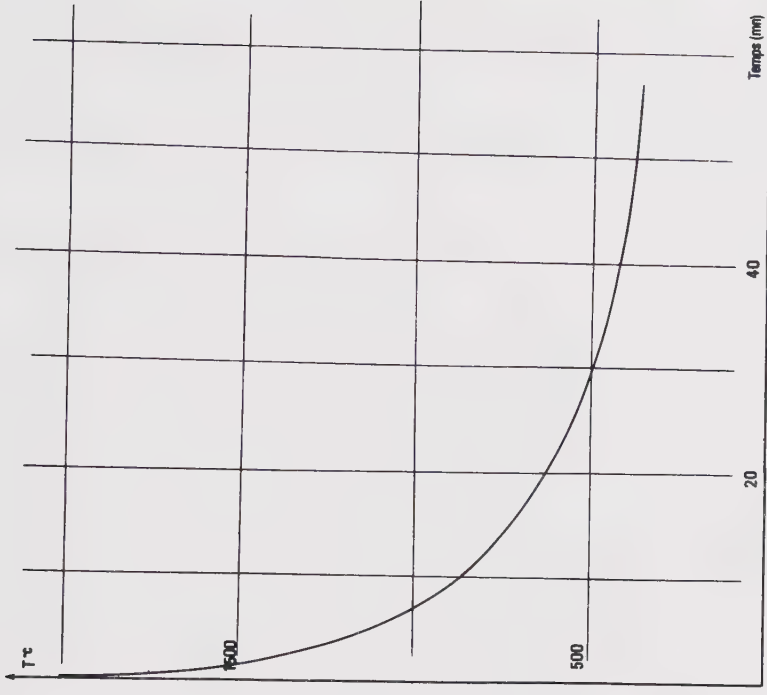


Figure 12 : Courbe de refroidissement.

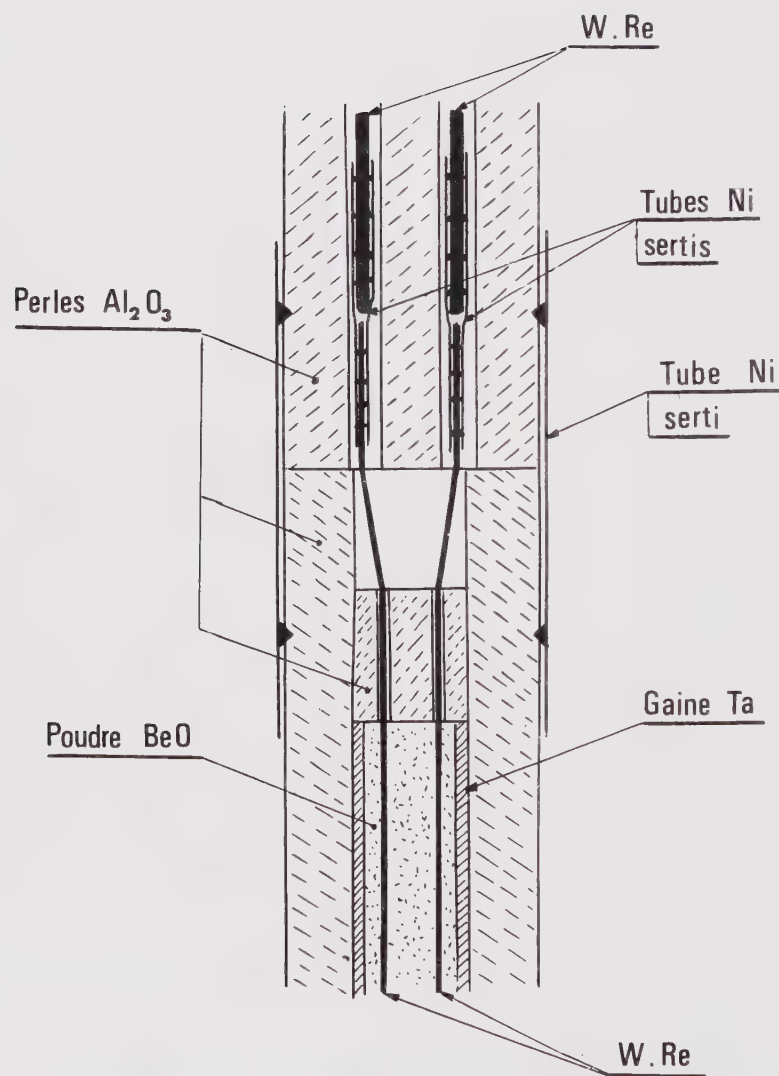


Figure 13 : Dispositif de montage des thermocouples gainés.

- L'enregistreur est donné pour une précision de $\pm 15 \mu V$ dans les gammes utilisées
- L'ESPM fournit une mesure entachée d'une erreur absolue de $\pm 8 \mu V$.

4° - Repérage de la température. Précision

- Le dispositif de soudure froide permet d'obtenir une température de référence comprise entre 0° et $0,5^\circ C$.
- le thermocouple Pt./Pt.10 % Rh monté simultanément et de la même manière que le thermocouple à étudier, assure une précision d'environ $\pm 1^\circ C$,
- entre 1050° et $2300^\circ C$, on repère la température au moyen d'un micropyromètre à disparition de filament (Jobin-Yvon), à travers la fenêtre de visée dont l'absorption a été préalablement déterminée.

La précision du micropyromètre est la suivante :

$$\Delta T_{1050^\circ C} = \pm 3^\circ C$$

$$\Delta T_{2000^\circ C} = \pm 7^\circ C$$

En fait, le creuset ne se comporte rigoureusement comme un corps noir qu'au-dessus de $1500^\circ C$. Ce phénomène, mis en évidence par la comparaison des repérages au thermocouple étalon et au micropyromètre, fait apparaître, entre les deux méthodes, un écart de 25° à $1050^\circ C$ qui diminue avec la température et devient nul au-dessus de $1500^\circ C$.

Pour lever cette indétermination, nous avons été conduit à mettre en oeuvre la méthode des points fixes qui, en accord avec le repérage par thermocouple étalon, nous a permis de corriger la lecture pyrométrique.

Les principaux points fixes de l'échelle thermométrique ont ainsi été utilisés. La fusion d'un fil du métal considéré sur la soudure chaude ou l'immersion de celle-ci dans un bain de la substance fondue, sont mises en évidence par un palier de F.E.M. sur l'enregistrement de la température en fonction du temps.

II. ETALONNAGES STATISTIQUES. DISPERSION

COURBES D'ETALONNAGES MOYENS

Nous avons procédé à l'étalonnage d'un grand nombre de thermocouples (en moyenne 20 pour chaque type) W./W. 26 % Re et W. 5 % Re/W. 26 % Re, afin d'une part de déterminer la dispersion maximum due aux écarts de composition entre les multiples lots de fabrication et, d'autre part, d'établir une courbe d'étalonnage moyen pour chaque catégorie et configuration de thermocouple. (30)

1° - Conditions d'étalonnage

Les F.E.M. délivrées par les thermocouples sont relevées en général tous les 50°C, après stabilisation complète de la température (palier de 5 minutes sur l'enregistrement).

Avant l'étalonnage, les thermocouples sont soumis à un préchauffage à environ 2000°C, pendant 15 minutes. La recristallisation provoquée par ce traitement évite l'effet variable de l'écrouissage initial. Quelle que soit la nature du thermocouple, on sait d'ailleurs qu'un recuit préalable est toujours recommandé.

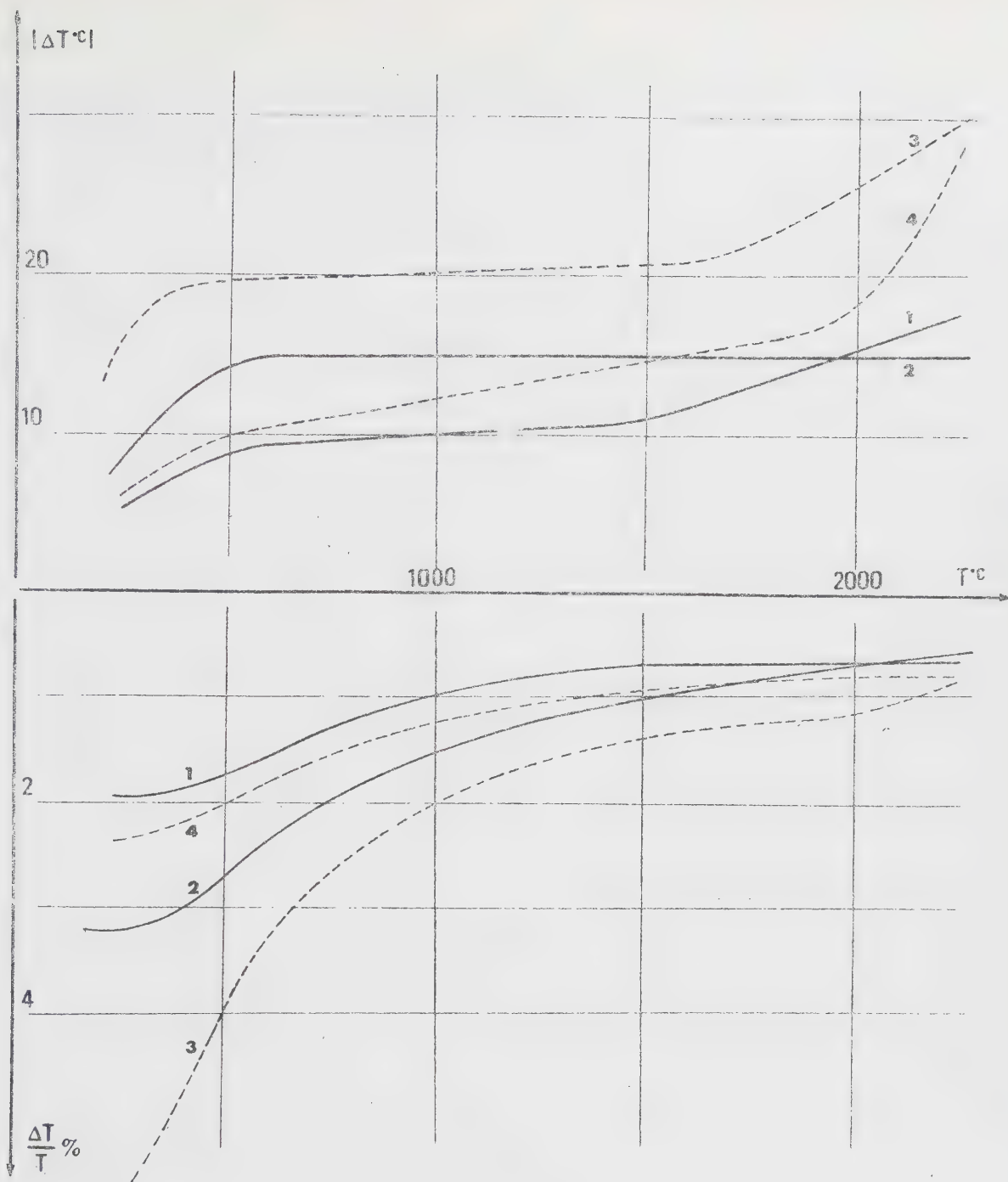


FIGURE I4. COURBES DE DISPERSION.

- (1) : W/W.26%Re FLS NUS
- (2) : W/W.26%Re GAINES 1,8 mm
- (3) : W.5%Re/W.26%Re FLS NUS
- (4) : W.5%Re/W.26%Re GAINES 1,8 mm

2° - Etalonnages statistiques. Dispersion.

Pour chaque type de thermocouple, nous avons porté sur un même graphique l'ensemble des points obtenus par étalonnage. La zone dans laquelle ces points sont inclus nous a permis de déduire l'écart maximum $\pm \Delta T$ par rapport à la valeur moyenne.

La figure 14 indique, en fonction de la température, les variations de la valeur absolue $|\Delta T|$ de cet écart et de l'erreur relative $\frac{|\Delta T|}{T}$ correspondante.

Remarques

Ces résultats sont favorables à la combinaison W./W.26 % Re. Nous pensons que la dispersion légèrement supérieure avec les thermocouples W. 5% Re/W. 26 % Re provient de l'influence plus sensible des variations de composition d'un lot à l'autre de l'alliage W.5 % Re. Nous n'avons jamais constaté de dispersion systématique due : soit au diamètre des fils dans le cas des thermocouples de fils nus, soit du matériau constituant la gaine (Tantale ou Niobium) pour les thermocouples gainés.

3° - Les courbes d'étalonnage

Pour tracer les courbes définitives d'étalonnage relatives à chaque type de thermocouple, nous avons pris, à une température donnée, la valeur moyenne de la F.E.M. dans la zone de dispersion.

On doit remarquer que les erreurs provenant des instruments de mesure restent très inférieures à la dispersion d'origine purement thermoélectrique.

Nous avons donc établi les tableaux d'étalonnage moyen avec deux décimales exactes (0,005 mV). Cette précision permet des mesures différentielles à :

$$\left. \begin{array}{l} \pm 0,5^{\circ}\text{C entre } 700^{\circ} \text{ et } 1700^{\circ}\text{C} \\ \pm 0,7^{\circ}\text{C à } 2000^{\circ}\text{C} \end{array} \right\} \text{ dans le cas du W./W. 26 \% Re}$$

et à

$$\left. \begin{array}{l} \pm 0,5^{\circ}\text{C entre } 400^{\circ} \text{ et } 1300^{\circ}\text{C} \\ \pm 0,8^{\circ}\text{C à } 2000^{\circ}\text{C} \end{array} \right\} \text{pour le W. 5 \% Re/W. 26 \% Re}$$

Les courbes et tableaux d'étalonnage moyens des thermocouples sont rassemblés à la fin de cet exposé.

4° - Caractéristiques des thermocouples

a) Thermocouples W/W. 26 \% Re de fils nus

Leur excellente linéarité se traduit par une sensibilité de $21 \mu\text{V}/^{\circ}\text{C}$ entre 700° et 1700°C . Cette dernière a diminué à 2000°C mais demeure encore voisine de $14,5 \mu\text{V}/^{\circ}\text{C}$.

Ce type de thermocouple, bien qu'ayant des caractéristiques thermoélectriques très bonnes, a l'inconvénient d'être excessivement fragile après recristallisation par suite de la présence de Tungstène pur.

b) Thermocouples W. 5 \% Re/W. 26 \% Re de fils nus

Entre 400° et 1300°C , leur pouvoir thermoélectrique est pratiquement constant et égal à $18,5 \mu\text{V}/^{\circ}\text{C}$, puis décroît jusqu'à $12 \mu\text{V}/^{\circ}\text{C}$ au voisinage de 2000°C .

c) Les thermocouples gainés

Leurs caractéristiques thermoélectriques sont sensiblement identiques à celles des thermocouples de fils nus, bien qu'ils présentent, par rapport à ces derniers, un écart appréciable à haute température suivant les dimensions de la gaine : ainsi, le W./W.26 \% Re gainé (ϕ_{ext} : 1,8 mm) délivre à 2000°C une F.E.M. supérieure de 1 mV à celle du même thermocouple constitué de fils nu

Diverses hypothèses peuvent être avancées pour expliquer cette anomalie. En particulier, on suppose qu'une diminuti

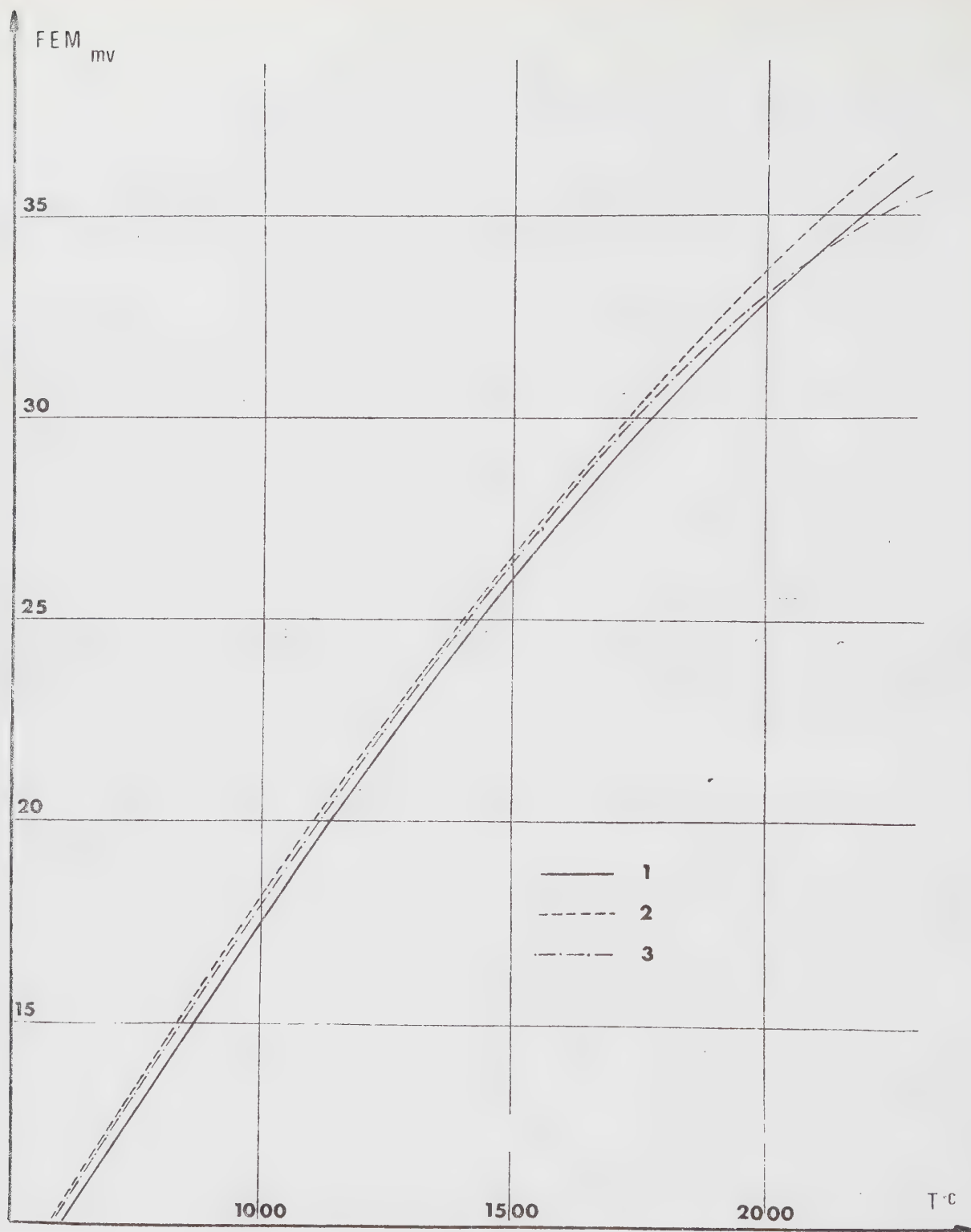


FIGURE 15 . THERMOCOUPLES W.5%Re/W.26%Re GAINES

(1):BOCUZE ; (2):HOSKINS ; (3):THERMO-ELECTRIC

de la résistivité de la glucine à haute température provoque, entre la gaine et les fils, l'apparition d'une F.E.M. de contact qui perturbe les mesures.

Nous n'avons pas établi les courbes d'étalonnage moyen pour les thermocouples gainés de diamètre extérieur 1,3 mm. En effet, le nombre des échantillons étalonnés a été insuffisant pour en faire l'étude statistique. Néanmoins, les quelques mesures réalisées font apparaître un résultat identique à celui des thermocouples gainés de diamètre extérieur 1,8 mm.

d) Comparaison avec les thermocouples d'autres provenances

La figure 15 donne les courbes $E_{mV} = f(T^{\circ}C)$ pour des thermocouples d'origines diverses : Bocuze, Hoskins, Enghelart, Thermo-Electric, que nous avons étalonnés ou dont nous avons relevé la courbe d'étalonnage fournie par le fabricant.

Les différences constatées proviennent essentiellement des écarts de composition d'un mode de fabrication à l'autre.

Remarque
.....

Dans les développements qui vont suivre, nous aurons souvent l'occasion de faire intervenir la quantité ΔT qui traduit un écart de température entre l'étalonnage initial et l'étalonnage réalisé après avoir soumis le thermocouple à l'influence d'un phénomène quelconque.

Nous conviendrons d'affecter ΔT du signe (+) si, pour une valeur donnée de la F.E.M., l'évolution se traduit par une élévation de la température indiquée, et du signe (-) dans le cas contraire.

III. STABILITE AU COURS DU TEMPS

Afin de déterminer les variations éventuelles de la F.E.M. délivrée par les thermocouples soumis à de longues périodes de chauffage, divers types ont été laissés, sans interruption, à 1500°C pendant 150 heures sous vide secondaire.

Ces données imposées par les caractéristiques du four (dont le maintien à une température supérieure pendant un temps plus long risquerait de provoquer des échauffements abusifs) sont, néanmoins, comparables aux conditions d'emploi industriel et suffisantes pour donner une idée du comportement des thermocouples.

Les essais effectués sur des thermocouples préalablement soumis à un recuit de stabilisation, puis étalonnés, n'ont pas modifié, de façon décelable, leurs caractéristiques thermoélectriques. En effet, les différences constatées entre les étalonnages avant et après chauffage prolongé dans les conditions précisées sont de l'ordre de grandeur des erreurs imputables au dispositif expérimental (soudure froide, mesure des F.E.M.,...)

Ces résultats, en accord avec les travaux de Lachman (29), trouvent leur justification dans les faits suivants :

- les faibles valeurs des coefficients de diffusion du Tungstène et du Rhénium dans le Tungstène ne permettent pas une variation considérable de la composition des alliages au voisinage de la soudure chaude,
- les propriétés physiques de ces alliages, recristallisés après le recuit de stabilisation, ne sont certainement pas modifiées par un chauffage prolongé ne comportant pas de chocs thermiques susceptibles de provoquer, à nouveau, des transformations métallurgiques.

IV. STABILITE DANS LES GAZ

Toutes nos manipulations ont été conduites sous vide secondaire. En effet, la conception de l'appareillage ne permet pas d'atteindre de hautes températures en présence de gaz inertes ou réducteurs, car leur conduction thermique provoque une nette augmentation des échanges calorifiques et entraîne une élévation notable de la puissance électrique consommée.

Il nous a donc paru intéressant de rappeler, brièvement, les conclusions d'essais effectués par Lachman (29) sur les thermocouples d'alliages Tungstène-Rhénium, sous atmosphère gazeuse, essentiellement Hydrogène et Argon.

1° - Influence de l'Hydrogène

Ses travaux ont abouti à la conclusion que ces thermocouples sont d'une stabilité remarquable sous Hydrogène (plus nette pour le type W/W. 26 % Re) particulièrement après un traitement de stabilisation (recuit préalable), et qu'il n'y a pas de contre-indication à leur emploi en présence de ce gaz.

2° - Influence de l'Argon

La figure 16 traduit les résultats d'essais de stabilité dans le temps sur des thermocouples W/W. 26 % Re chauffés à 1000° et 2200°C sous flux d'Argon (150 l/h).

Les dérives ainsi constatées sont inférieures à la dispersion d'origine proprement thermoélectrique observée par Lachman sur ses échantillons. Il en ressort que l'utilisation de tels thermocouples, sous Argon, est tout à fait satisfaisante.

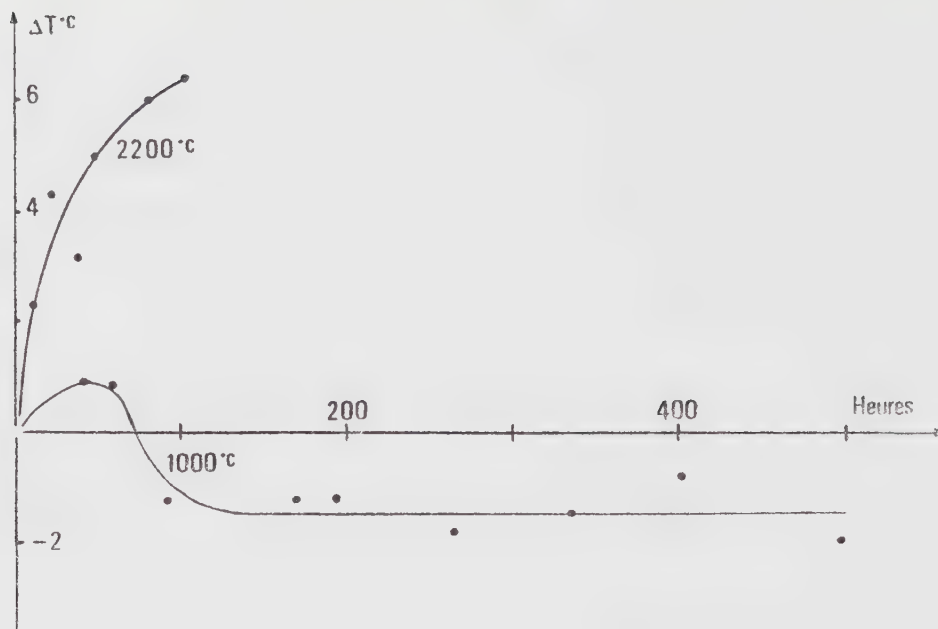


FIGURE 16. STABILITE DU W./W.26%Re SOUS ARGON (29)

Remarque

Des études systématiques sous Hélium n'ont pas encore été réalisées. Les conclusions relatives aux essais décrits ci-dessus, nous conduisent à penser que la présence d'Hélium n'apporterait que de très faibles modifications aux caractéristiques de ces thermocouples.

L'étude de l'influence des chocs thermiques sur le comportement des thermocouples ainsi que la mesure de leur temps de réponse a nécessité la construction d'un four (II) ayant sensiblement les mêmes caractéristiques que celui décrit précédemment, mais auquel on peut adapter un dispositif permettant d'effectuer les essais considérés.

I. DISPOSITIF EXPERIMENTAL

1° - Description et caractéristiques du four II

Le four II, dont le principe de fonctionnement reste identique au four I, est représenté par la figure 17 sur laquelle on distingue les quelques modifications de détails qui ont été apportées.

a) L'élément chauffant

Afin d'améliorer la résistance au fluage de l'élément chauffant, nous avons utilisé du Tungstène thorié (0,4 % de Th) à la place du Tungstène pur.

b) L'enceinte extérieure

Constituée par une double paroi en Acier inoxydable munie intérieurement de chicanes pour assurer un refroidissement plus efficace, sa partie supérieure est obturée par un plateau également refroidi et sur lequel viennent se monter les dispositifs annexes.

Latéralement, une fenêtre de visée permet les observations pyrométriques sur cinq points différents. En effet, ce four a aussi été prévu pour l'étude éventuelle de l'influence des gradients thermiques le long des thermocouples.

2° - Dispositif "Chocs thermiques"

a) Principe

Ce dispositif, représenté en vue écorchée sur la figure 18, assure le déplacement du thermocouple à des vitesses différentes de manière que sa soudure chaude puisse passer d'une zone chaude à une zone froide, ou vice-versa, le four étant maintenu à température constante sous vide secondaire.

b) Caractéristiques

D'une part, la course maximum de 250 mm permet à la soudure chaude du thermocouple d'aller du niveau inférieur du creuset (zone chaude) au niveau du plateau supérieur du four (zone froide). En fait, le choix de la température de la cellule conditionne celle de la zone froide.

D'autre part, les 5 vitesses de déplacement prévues (variant dans les rapports 1/2, 1, 5, 10 et 20) assurent la translation maximum dans des temps compris entre 8 minutes et 15 secondes.

II. INFLUENCE DES CHOCS THERMIQUES

Nous définirons "un choc thermique" comme étant la montée et la descente successives de la température de la soudure chaude du thermocouple, ou vice versa, sans paliers, et avec des vitesses de chauffage et de refroidissement identiques calculées en fonction de la différence ($T_{\max} - T_{\min}$) entre les températures extrêmes atteintes.

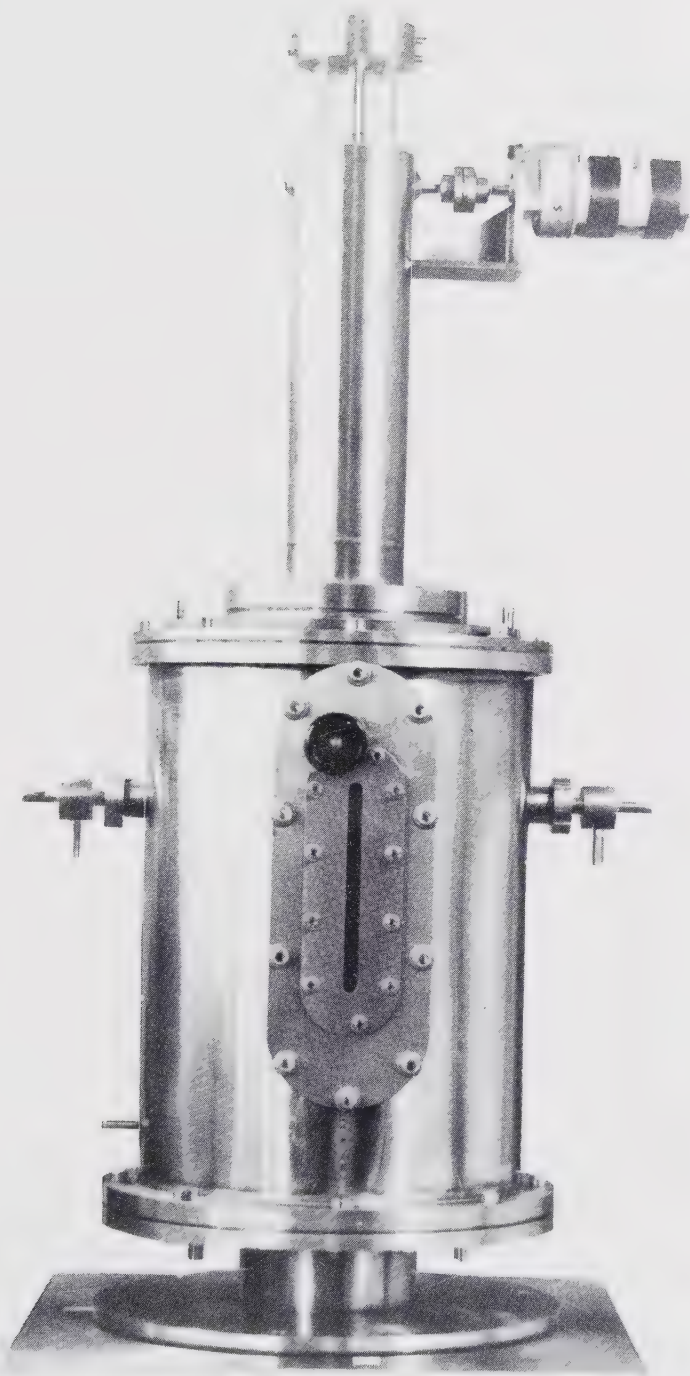


Figure 17 : Four II avec dispositif "chocs thermiques".

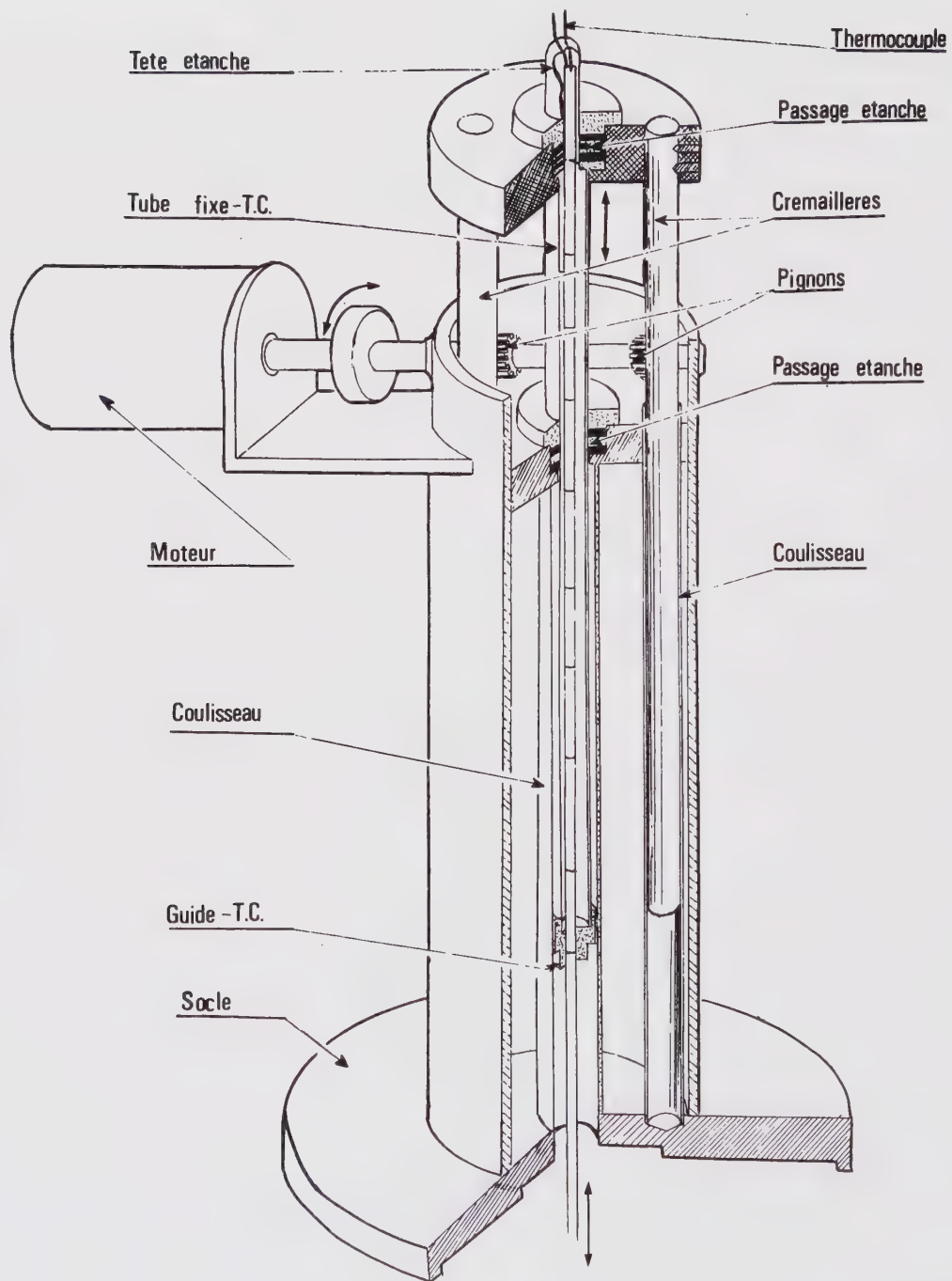


Figure 18 : Dispositif "chocs thermiques".

1° - Essais préalables

a) Méthode expérimentale

Les premiers essais ont été réalisés sur le four I, en provoquant des chocs thermiques par la montée rapide (ou progressive) de la température et par l'arrêt instantané (ou la diminution lente) du courant d'alimentation.

Les vitesses moyennes ($\frac{T_{\max} - T_{\min}}{\Delta t}$) de refroidissement ou de chauffage ainsi obtenues n'excèdent pas 5°C/sec.

b) Résultats

Les études faites sur des thermocouples de différents types ont fourni les résultats suivants :

- entre 2000°C et 1000°C, pour des vitesses moyennes inférieures à 1°C/sec, aucune modification n'a été constatée sur leurs caractéristiques thermoélectriques, quel que soit le nombre des chocs thermiques.
- par contre, dans la même gamme de températures, mais pour des vitesses moyennes de l'ordre de 5°C/sec, il apparaît, après trois ou quatre chocs thermiques, une variation importante de la F.E.M. délivrée. La figure 20a indique les écarts ΔT entre les étalonnages avant et après les chocs thermiques subis par un thermocouple W. 5 % Re/W. 26 % Re constitué de fils nus ($\emptyset$: 0,8 mm). Des résultats identiques ont été obtenus avec les thermocouples gainés.

2° - Essais réalisés avec le dispositif "Chocs thermiques"

a) Conditions expérimentales

Nous avons effectué nos expériences en fixant à 2000°C la température $T_{\max}$. Celle-ci est, en l'occurrence, la température à laquelle on maintient le creuset pendant la durée de la manipulation. Dans ces conditions, il résulte que la température de la zone froide est égale à 250°C.

Compte tenu de ces températures extrêmes (déterminées par la mesure préalable du gradient thermique le long du trajet parcouru par le thermocouple) et des 5 vitesses de déplacement dont nous disposons, les courbes $T^{\circ}\text{C} = f(\text{temps})$ représentées sur la figure 19 traduisent en fonction du temps la température de la région où se trouve la soudure chaude du thermocouple lors de sa translation.

Nous avons affecté chaque courbe d'une vitesse moyenne $V_m(T)$ définie comme précédemment, et d'une vitesse maximum $V_M(T)$, correspondant à la partie linéaire de ces courbes :

$V_M(T) = \frac{1750 - 250^{\circ}}{\Delta t}$. En effet, le gradient thermique n'est pratiquement linéaire qu'entre 1750° et 250°C .

Le tableau ci-dessous indique les valeurs de ces vitesses pour les différentes courbes considérées.

	$V_m(T)$ °C/sec	$V_M(T)$ °C/sec
I	3,5	5,5
II	6,5	10
III	30	50
IV	60	90
V	115	185

b) Résultats

A titre d'exemple, les figures 20b et 20c montrent les écarts ΔT (définis page 37) provoqués par les chocs thermiques de vitesse donnée sur deux des thermocouples étudiés.

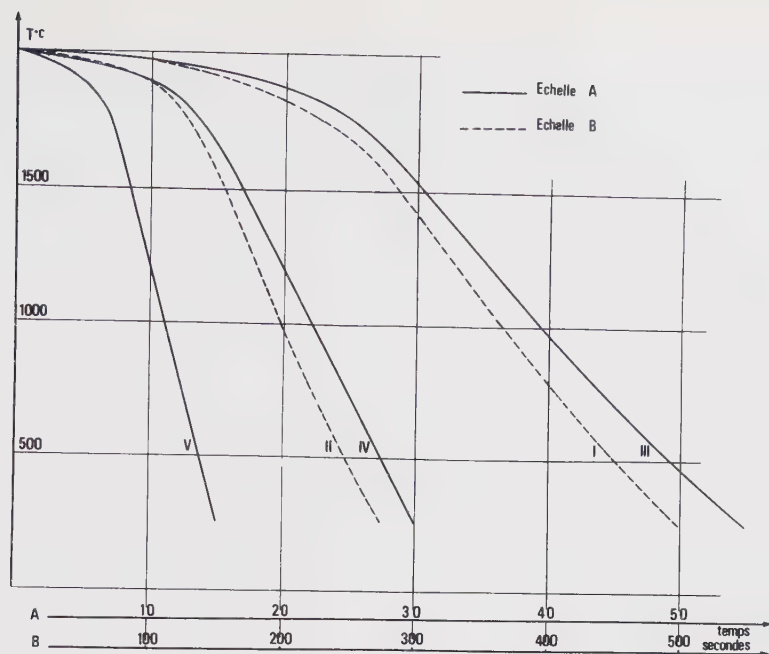


Figure 19 : Gradient de température.

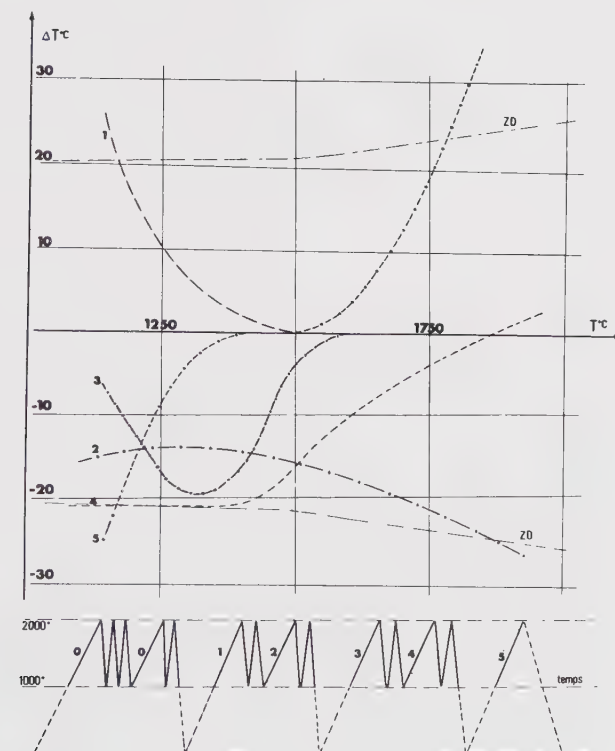


Figure 20 a : W. 5 % Re / W. 26 % Re.
Fils nus $\varnothing$: 0,8 mm

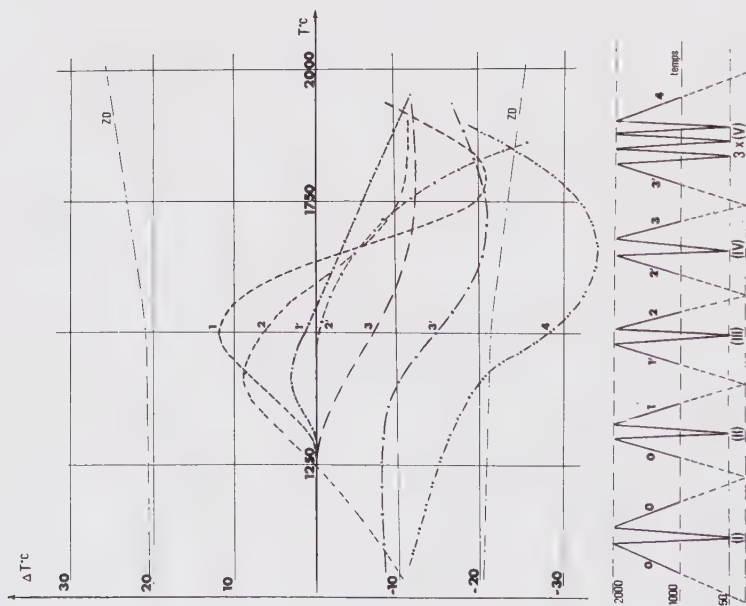


Figure 20 b : W. 5 % Re / W. 26 % Re.
Fils nus $\varnothing$: 0, 5 mm

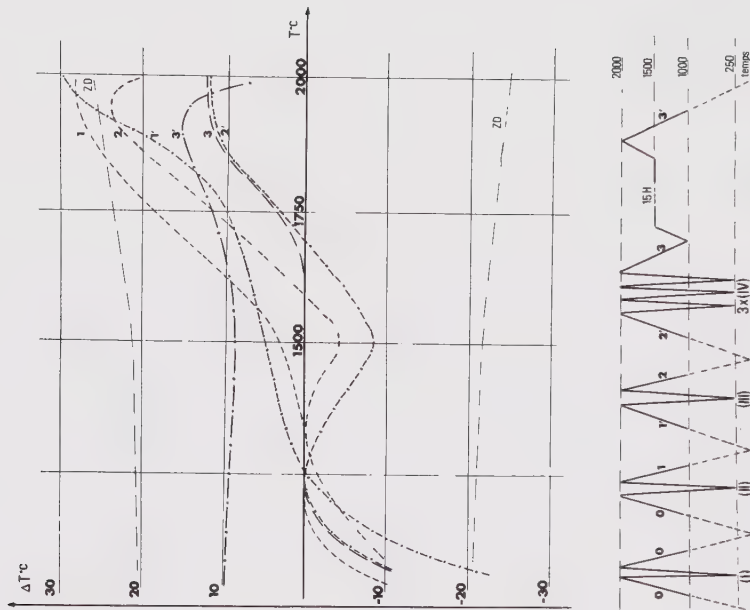


Figure 20 c : W. 5 % Re / W. 26 % Re.
Gaine Ta $\varnothing$: 1, 3 mm

3° - Conclusion

a) Influence de la vitesse et du nombre de chocs thermiques

Les essais que nous avons réalisés peuvent se résumer dans le tableau ci-dessous.

Nombre $V_m(T)$ °C/sec.	< 4	> 4
< 3,5	Pas d'influence	
= 3,5	Pas d'influence	Dérive
> 3,5	Dérive	

b) Importance des dérives

Nous avons tracé sur les courbes $\Delta T = f(T^{\circ}C)$, représentées par les figures 20b et 20c, la zone de dispersion d'origine purement thermoélectrique afférente au type de thermocouple étudié. Ceci nous permet de constater que les dérives, dont sont l'objet les thermocouples soumis aux chocs thermiques, sont de l'ordre de grandeur de cette dispersion.

c) Reproductibilité

Ces courbes ne semblent pas obéir à une loi déterminée. En effet, les dérives mesurées évoluent de façon imprévisible et incohérente en fonction du nombre et de la vitesse des chocs. De plus, une différence apparaît entre les étalonnages du type E_n et E'_n .

d) Régénération et interprétation

Le chauffage prolongé à $1500^{\circ}C$ d'un thermocouple préalablement soumis à un recuit de stabilisation, et auquel on a fait subir

une série de chocs thermiques (figure 20c), n'assure pas sa régénération puisque la dérive n'en est pas pour autant éliminée. Il semble donc que l'on soit en présence de phénomènes irréversibles dont l'influence variable sur la F.E.M. délivrée traduit un état d'équilibre métallurgique instable, et qui trouve sa justification dans le fait que les parties non entièrement cristallisées sont continuellement modifiées par les variations rapides de température provoquant des changements dans la grosseur des grains, dans leur orientation...

Il serait intéressant, pour confirmer cette hypothèse, de pouvoir cristalliser entièrement le thermocouple (recuit préalable de stabilisation) dans un dispositif prévu à cet effet, et de le soumettre à une série de chocs thermiques du même type que ceux décrits précédemment.

III. MESURE DES TEMPS DE REPONSE

1° - Principe de la mesure

Pour un intervalle de température $T_1 - T_0$, dans un milieu donné, le temps de réponse τ_0 d'un thermocouple est le temps mis par celui-ci pour repérer la température T_0 lorsqu'on le fait passer de la température T_1 à la température T_0 , avec une vitesse infinie.

Ne pouvant atteindre, expérimentalement, une vitesse de variation infinie, on définit le temps de réponse comme étant la limite de $\tau = t_2 - t_1$ lorsque $t_1 - t_0$ tend vers zéro (figure 21)

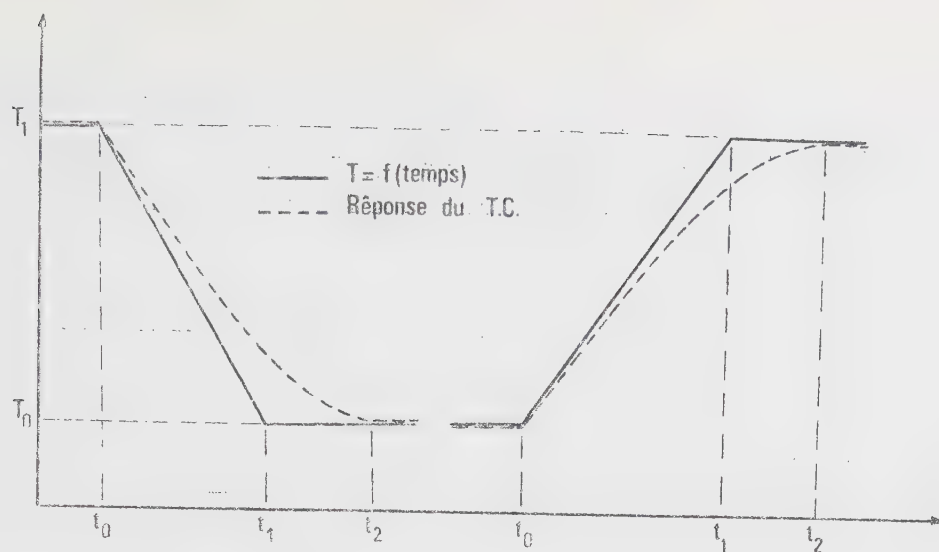


FIGURE 21.

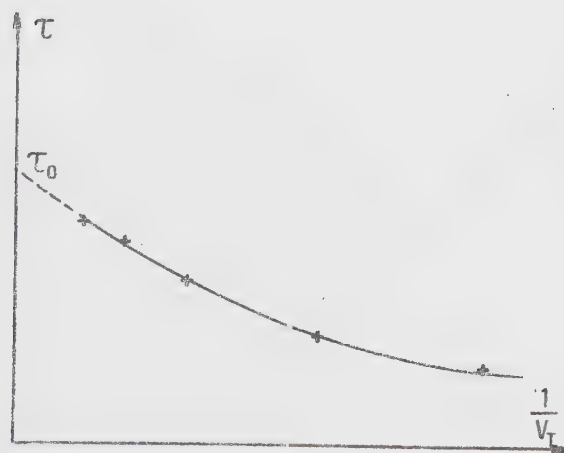


FIGURE 22.

Soit $T = V_T \cdot t$ la fonction traduisant cette variation (supposée linéaire) dans l'intervalle $t_1 - t_0$, où V_T est la vitesse de variation. Entre les températures limites envisagées, on a :

$$T_1 - T_0 = V_T(t_1 - t_0) \quad ; \quad \frac{1}{V_T} = \frac{t_1 - t_0}{T_1 - T_0}$$

Si, pour plusieurs valeurs de V_T , on mesure $\tau = t_2 - t_1$, et on construit la courbe $\tau = f(\frac{1}{V_T})$, schématisée sur la figure 22, l'extrapolation de cette courbe à $\frac{1}{V_T} = 0$ fournit la valeur τ_0 cherchée.

Remarque : cette définition du temps de réponse, différente de celle habituellement admise (temps mis par le thermocouple pour repérer 63,2 % de l'écart de température auquel il est brusquement soumis), correspond au temps réel et nous est imposée par le fait que les courbes de réponse du thermocouple, obtenues expérimentalement au chauffage et au refroidissement, ne sont pas des exponentielles simples.

2° - Méthode expérimentale

En même temps que les essais de chocs thermiques, nous avons procédé à la détermination des temps de réponse, car les conditions expérimentales correspondent, pratiquement, au principe de la mesure. Néanmoins, comme nous l'indiquons dans le chapitre précédent, la vitesse de variation de la température n'est constante qu'entre 1750° et 250°C, pour une température maximum de 2000°C. Il convient donc de tenir compte, dans les résultats obtenus, des courbes $T = f(\text{temps})$ représentées sur la figure 19.

3° - Résultats

a) Temps de réponse au refroidissement

La difficulté de situer le point de stabilisation (courbes asymptotiques) nous a contraint à mesurer le temps de réponse aux différentes vitesses, à une température de 10°C supérieure à la température de la zone froide.

Au refroidissement, les vitesses de variation de la température étant constantes à partir de 1750°C (conditions proches du principe de la mesure), nous avons traduit la variation de τ en fonction de l'inverse de la vitesse maximum $V_M(T)$.

L'extrapolation des courbes $\tau = f(\frac{1}{V_M})$, représentées sur la figure 23, pour différents types de thermocouples, fournit la valeur de τ_0 avec une précision de l'ordre de la minute.

Les valeurs ainsi obtenues, dans les conditions précisées (T_{Max} : 2000°C, T_{Min} : 250°C), sont les suivantes :

- τ_0 compris entre 13 et 15 minutes pour les thermocouples gainés ($\varnothing$ ext. 1,8 ou 1,3 mm) d'une longueur de 350 mm en moyenne.
- τ_0 compris entre 18 et 20 minutes pour les thermocouples constitués de fils nus ($\varnothing$: 0,5 mm), isolés avec des perles réfractaires de 250 mm de long.

b) Temps de réponse au chauffage

La présence en fin de parcours d'une zone où le gradient de température n'est pas linéaire fausse le principe même de la mesure des temps de réponse au cours du chauffage. Néanmoins, nous avons, à titre indicatif, représenté sur la figure 24, les valeurs de τ en fonction de l'inverse de la vitesse moyenne $V_m(T)$. On peut supposer que si les conditions de linéarité étaient satisfaites, les temps de réponse seraient sensiblement accrus.

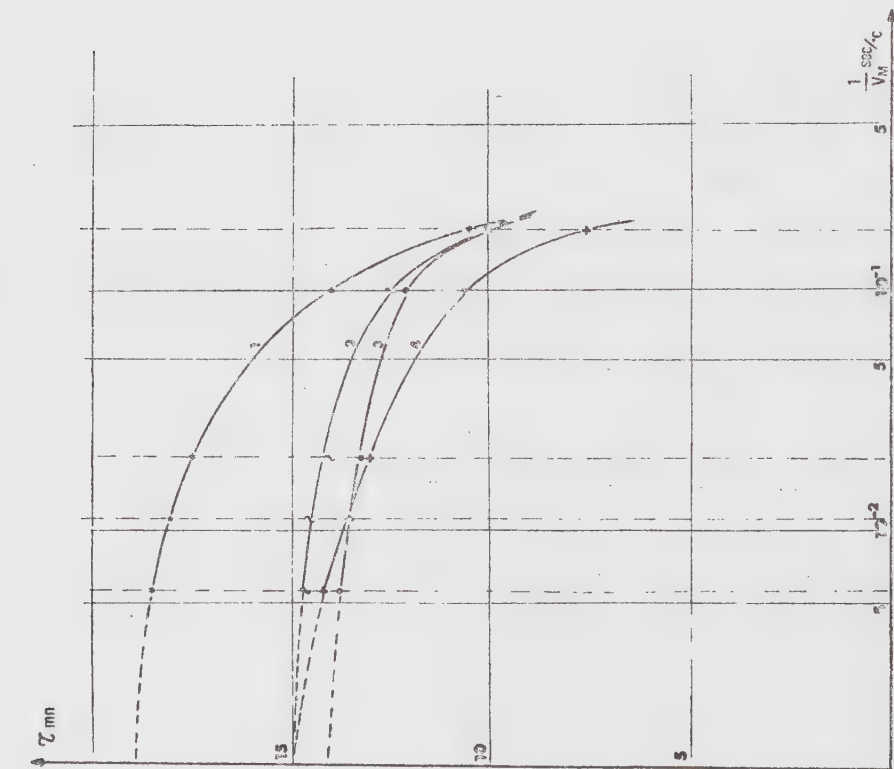


FIGURE 23. $W.5\%Re/W.26\%Re$.

- (1): FILS NUS $\phi: 0,5mm$
 (2)(3): GAINES Ta $\phi: 1,3mm$
 (4): GAINE Ta $\phi: 1,8mm$

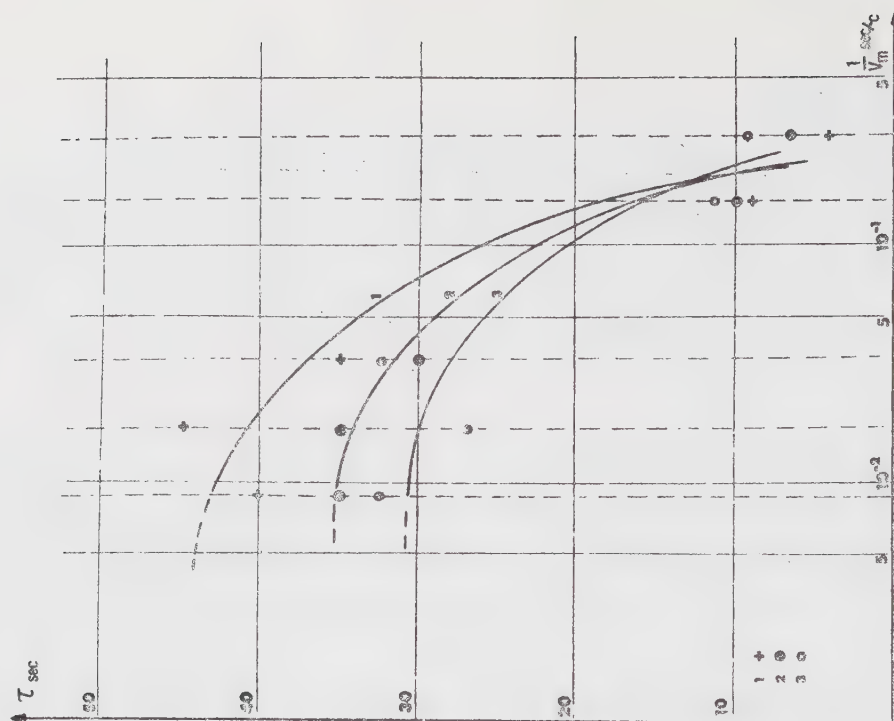


FIGURE 24.

$W.5\%Re/W.26\%Re$

- (1): FILS NUS $\phi: 0,5mm$
 (2): GAINE Ta $\phi: 1,3mm$
 (3): GAINE Ta $\phi: 1,8mm$

L'extrapolation des courbes $\tau = f(\frac{1}{V_m})$ fournit, pour tous les thermocouples étudiés, des valeurs de τ_0 comprises entre 35 et 40 secondes avec une erreur de ± 5 secondes.

C - E T U D E D E L A C O M P E N S A T I O N ----- D E S O U D U R E F R O I D E -----

Dans la première partie, on a décrit le principe de la compensation de soudure froide d'un thermocouple.

Il existe déjà, sur le marché, des alliages (X-Y) permettant de compenser les thermocouples d'alliages Tungstène-Rhénium jusqu'à une température de jonction voisine de 450°C. Ces alliages ont, néanmoins, l'inconvénient de présenter une résistivité importante dont l'influence est d'autant plus sensible que les longueurs utilisées sont grandes.

C'est pourquoi nous avons cherché à élaborer des alliages de composition simple, donc facilement reproductibles, possédant une faible résistivité et assurant la compensation des thermocouples du type W.5 % Re/W. 26 % Re qui sont les plus employés.

I. DISPOSITIF EXPERIMENTAL

Nous avons vu que pour déterminer la combinaison de deux alliages, tels que P et Q (figure 5), destinés à assurer la compensation, il suffit de mesurer la F.E.M. délivrée, entre T° et Tj, par le thermocouple constitué de ces deux éléments.

Comme les températures de jonction Tj sont rarement supérieures à 500°C, nous avons placé les alliages à étudier dans un four à passage avec circulation d'Argon.

II. ETUDE DES ALLIAGES

1° - Essais préalables

A la suite de divers essais peu concluants effectués avec des matériaux couramment employés en thermoélectricité (Chromel, Alumel, Fer, Constantan, Cuivre-Nickel...) des recherches bibliographiques nous ont conduit à étudier les alliages binaires Cobalt-Fer.

Les mesures réalisées sur différentes et nombreuses combinaisons de ces alliages permettent de conclure que la meilleure compensation est obtenue avec les pourcentages suivants : Co.23,5 % Fe et Co. 17 % Fe, le premier relié au W. 5 % Re, le second au W. 26 % Re.

La figure 25 permet de comparer les F.E.M. délivrées par les couples Co. 23,5 % Fe/Co.17 % Fe, W. 5 % Re/W. 26 % Re, et leurs combinaisons.

2° - Caractéristiques du thermocouple Co. 23,5 % Fe/Co. 17 % Fe

a) Diagramme d'équilibre Cobalt-Fer

Le diagramme d'équilibre montre que ces deux alliages sont situés dans une phase solide dont la première ligne de transformation se place à 700°C pour le 17 % de Fer et à 850°C pour le 23,5 % de Fer.

b) Précision et étendue de la compensation

Les variations, en fonction de la température, de la différence de F.E.M. $\Delta E = E_{T^j}^{T^j}(\text{Co,Fe}) - E_{T^j}^{T^j}(\text{W,Re})$ existant entre ce thermocouple et le W. 5 % Re/W. 26 % Re, sont illustrées sur la figure 26.

La figure 27 représente l'erreur commise sur le repérage de la température T de la soudure chaude, en fonction de T, et pour diverses températures de la jonction Tj, les alliages étant montés comme nous venons de le préciser.

Ces courbes permettent de constater que ce type d'alliages assure une excellente compensation du thermocouple W. 5 % Re/W. 26 % Re jusqu'à une température de jonction d'environ 250°C, puisque le maximum d'erreur est de 1 % pour T = 2000°C et Tj = 250°C.

c) Résistivité des fils

Les mesures de résistivité, à 20°C, ont fourni les valeurs suivantes :

Co.23,5 % Fe : $10 \cdot 10^{-6}$ Ohm.cm ($12,2 \cdot 10^{-6}$ Ohm.cm pour le W. 5 % Re)
Co.17 % Fe : $14 \cdot 10^{-6}$ Ohm.cm ($28,5 \cdot 10^{-6}$ Ohm.cm pour le W. 26 % Re)

III. COMPARAISON AVEC LES FILS X-Y

1° - Précision et étendue de la compensation

Nous avons effectué, avec les alliages commercialisés X-Y, des expériences semblables à celles qui viennent d'être décrites et les résultats obtenus sont rassemblés sur les figures 25, 26 et 28.

- la F.E.M. délivrée par le thermocouple X-Y est représentée sur la figure 25,
- la figure 26 fait apparaître la différence $\Delta E = E_{T^0}^{Tj}(X-Y) - E_{T^0}^{Tj}(W-Re)$,
- enfin, la figure 28 montre l'erreur commise sur le repérage de la température T de la soudure chaude.

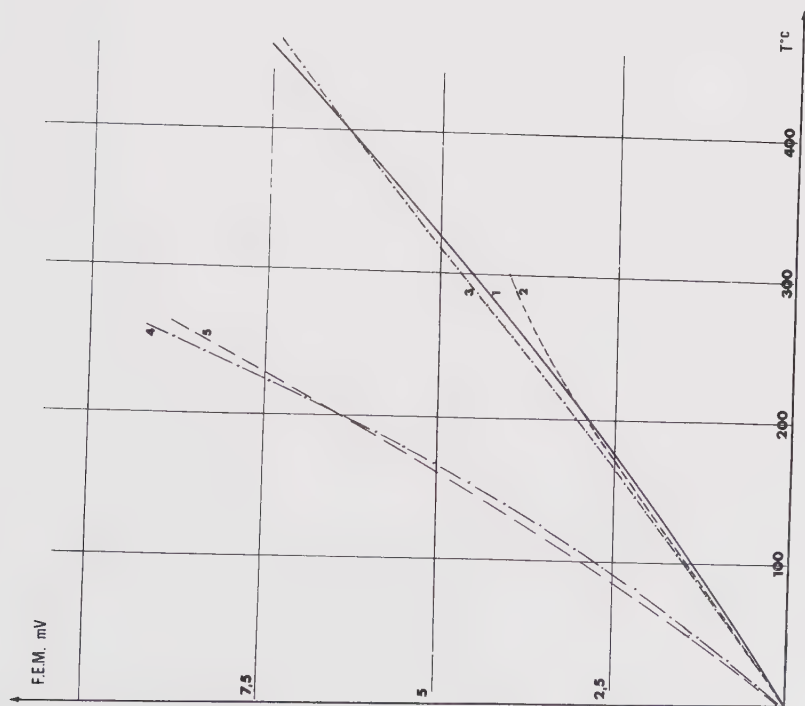


Figure 25 : (1) : W. 5 % Re / W. 26 % Re.
 (2) : Co. 23,5 % Fe / Co. 17 % Fe.
 (3) : X - Y.
 (4) : W. 26 % Re / Co. 23,5 % Fe.
 (5) : W. 5 % Re / Co. 23,5 % Fe.

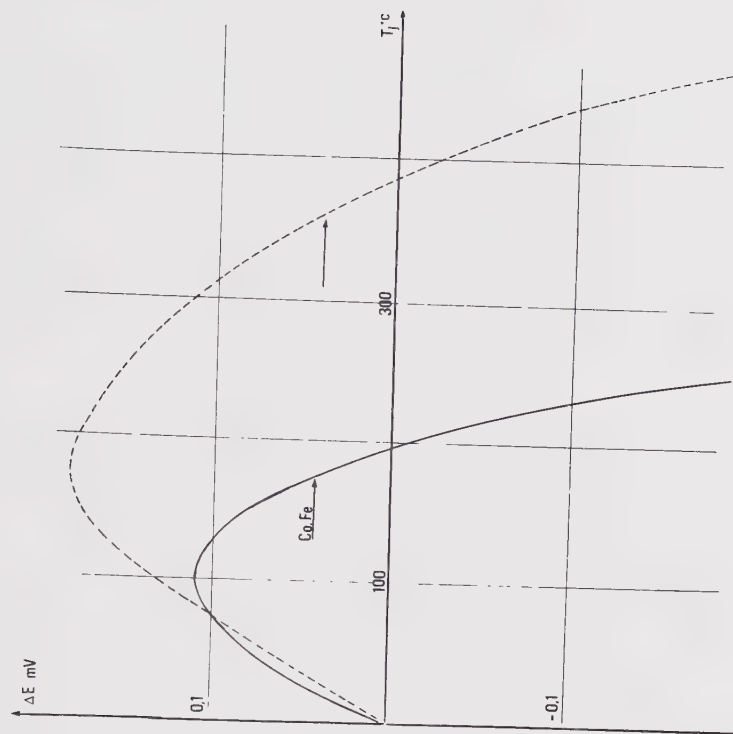


Figure 26 .

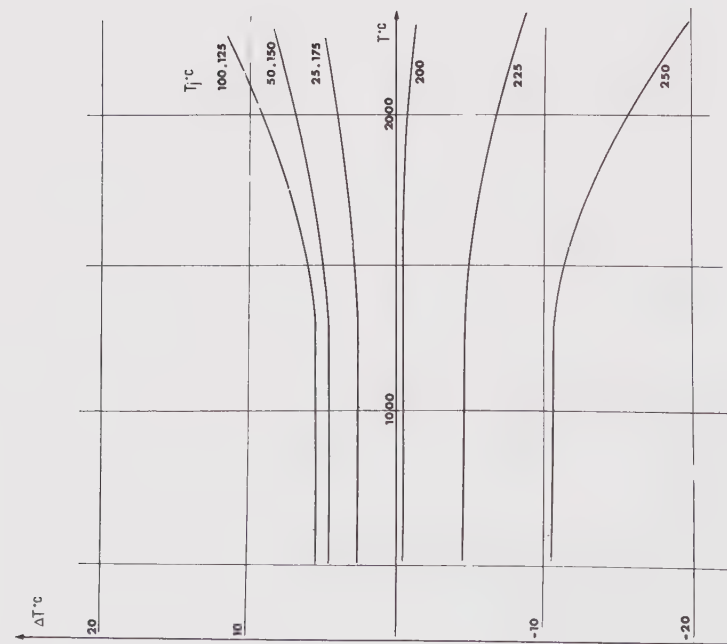


Figure 27 : Fils d'alliage Fe - Co.

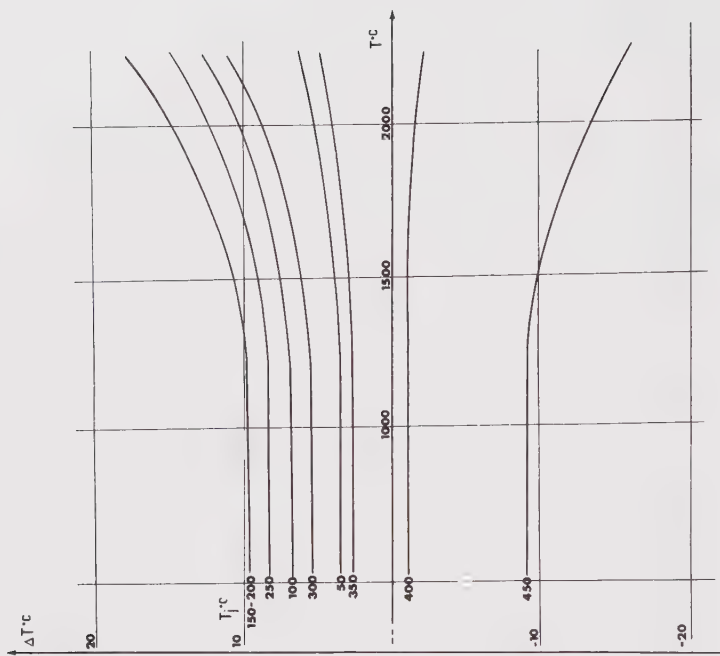


Figure 28 : Fils X - Y.

2° - Résistivité des fils

Les résistivités, à 20°C, données par le fabricant sont égales à :

- 86.10^{-6} Ohm.cm pour le fil relié au W. 5 % Re
- 115.10^{-6} Ohm.cm pour le fil relié au W. 26 % Re.

IV. CONCLUSION

On constate donc que pour réaliser la compensation de soudure froide d'un thermocouple W. 5 % Re/W. 26 % Re, il est préférable d'utiliser les alliages Cobalt-Fer lorsque les températures de jonction n'excèdent pas 250°C et les longueurs de fils mises en jeu sont importantes ; par contre, l'emploi des alliages X-Y s'avère plus efficace pour des températures de jonction allant jusqu'à 450°C et des fils de faible longueur.

T R O I S I E M E P A R T I E

=====

ETUDE DES THERMOCOUPLES D'ALLIAGES TUNGSTENE-RHENIUM

"EN PILE"

=====

E T U D E "E N P I L E"
-O-O-O-O-O-O-O-O-O-O-O-O-O-O-O-

La difficulté de rendre compte directement de l'évolution des thermocouples au cours d'irradiations en pile dans une gamme étendue de température nous a conduit à mettre en oeuvre une manipulation dont le principe est basé sur une étude comparative. Les différentes phases de celle-ci sont les suivantes :

- on étalonne les thermocouples contenus dans une gaine (G_2) dans un premier four (TETARD),
- on les soumet ensuite, à l'intérieur d'un second four (HEBE), à une série d'irradiations à température élevée,
- enfin, les thermocouples sont placés à nouveau dans le premier four afin d'être réétalonnés.

Il est alors possible, en comparant les caractéristiques relevées avant et après irradiation, de déduire l'influence d'un tel traitement sur la F.E.M. délivrée par les thermocouples.

A - D I S P O S I T I F E X P E R I M E N T A L

Cette expérience implique la mise en place d'un dispositif expérimental relativement important qui doit, par ailleurs, répondre à des critères bien définis car la manutention des produits irradiés nécessite certaines précautions, et les opérations en pile sont sujettes à des règles très strictes.

Ce dispositif comprend :

- la pile SILOE, où s'effectuent les irradiations,
- le four d'irradiation HEBE appartenant au Centre de Grenoble et qui est installé au coeur de la pile,
- le four d'étalonnage TETARD situé à poste fixe dans l'un des bassins de travail de la pile,

- la gaine G₂ porte-thermocouples échantillons à irradier,
- enfin, les dispositifs annexes : alimentation électrique, groupe de pompage, enregistreurs...

I. LA PILE SILOE. LE FOUR HEBE

1° - La pile SILOE

Rappelons qu'il s'agit d'un réacteur du type "piscine à coeur ouvert" pouvant atteindre une puissance de régime de 15 MW, avec les flux suivants :

- flux thermique moyen : 10^{14} neutrons.cm⁻².sec⁻¹
- flux rapide moyen : $1,5.10^{13}$ neutrons.cm⁻².sec⁻¹

Ses 25 éléments combustibles (Uranium enrichi à 90 %) et 5 éléments de contrôle à 10 plaques d'Uranium et une barre de carbure de Bore, lui assurent un fonctionnement continu de 3 semaines à la puissance de régime.

Une trentaine d'emplacements autour du coeur, pour une vingtaine de boucles ou capsules, sont offerts aux expérimentateurs.

2° - Le four d'irradiation HEBE (31)

Etudié et réalisé au Centre de Grenoble, ce four est destiné à l'irradiation d'éléments non fissiles entre 400°C et 1400°C sous atmosphère neutre. Bien que la température de 1000°C constitue une limite pour ses éléments chauffants, l'échauffement nucléaire permet aux échantillons, en l'occurrence la gaine G₂, d'atteindre la température de 1300°C prévue pour l'irradiation des thermocouples.

II. LE FOUR D'ETALONNAGE TETARD

Les critères de construction du four TETARD sont tels que celui-ci doit :

- dissiper la puissance nécessaire à l'obtention d'une température de 2000°C par variation continue, en assurant une bonne stabilité thermique pour les mesures,
- être étanche au vide : le fonctionnement à 10^{-5} mm Hg, en régime dynamique, étant indispensable,
- être adapté à une immersion dans l'eau,
- permettre un repérage aisé de la température des échantillons,
- réaliser, sans risques, la mise en place de la gaine G₂,
- avoir une forme hydrodynamique facilitant son refroidissement par convection naturelle de l'eau de la piscine,
- posséder un encombrement adapté à un pompage rapide et à une installation fonctionnelle.

1° - Description du four

a) L'élément chauffant

24 tiges de Tungstène ($\emptyset$: 2 mm ; L : 275 mm)
reliées à des couronnes en Molybdène et disposées comme l'indique la figure 29, constituent l'élément chauffant.

Un tel montage permet au résistor une dilatation sans contraintes, tout en évitant les effets de champ. Par ailleurs, on peut supposer que la température le long de l'axe est constante sur une dizaine de centimètres de part et d'autre du centre.

b) Les arrivées de courant

Quatre barres en Molybdène, symétriquement distribuées sur les couronnes, fixées deux à deux à des passages étanches, assurent les arrivées de courant. Deux tresses de Cuivre ($\emptyset$: 25 mm), solidaires des passages, vont à l'alimentation électrique.

c) Les écrans thermiques

Au nombre de six (4 en Molybdène, 2 en Acier inoxydable), ils sont disposés, comme dans les fours décrits précédemment, autour de l'élément chauffant.

Dans les parties supérieures et inférieures, l'isolement thermique est également assuré par des disques, mais usinés de façon à permettre le passage des gaines porte-thermocouples.

d) L'enceinte extérieure

Réalisée avec une simple tôle d'acier inoxydable (épaisseur 5 mm), donc dépourvue de refroidissement autonome, elle est obturée à ses extrémités par des cônes lui donnant une forme hydrodynamique.

Sur le cône inférieur sont ménagées deux sorties étanches, l'une pour la gaine contenant les thermocouples étalons, l'autre pour une jauge à vide.

Le cône supérieur laisse passage aux deux arrivées de courant ; il est fixé au manchon de pompe.

L'encombrement de cet ensemble (enceinte et cônes) est le suivant :

- hauteur : 830 mm ; diamètre : 355 mm

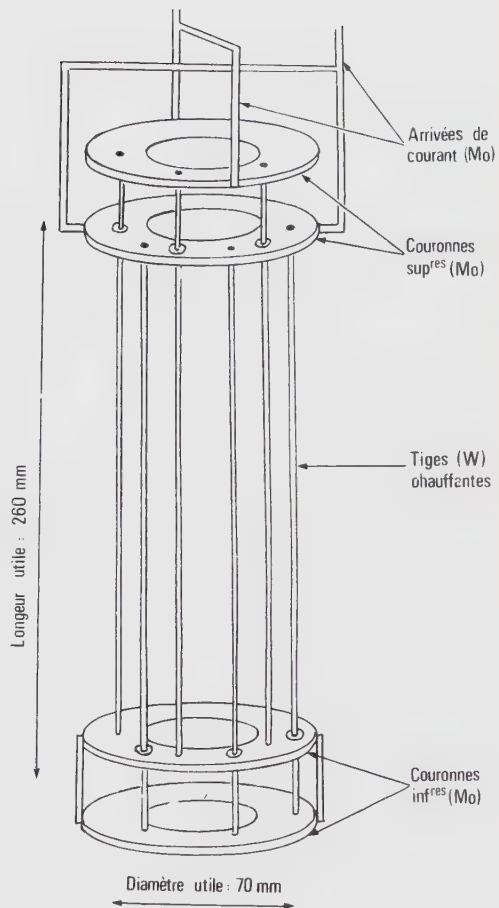


Figure 29 : Élément chauffant du four "TETARD".

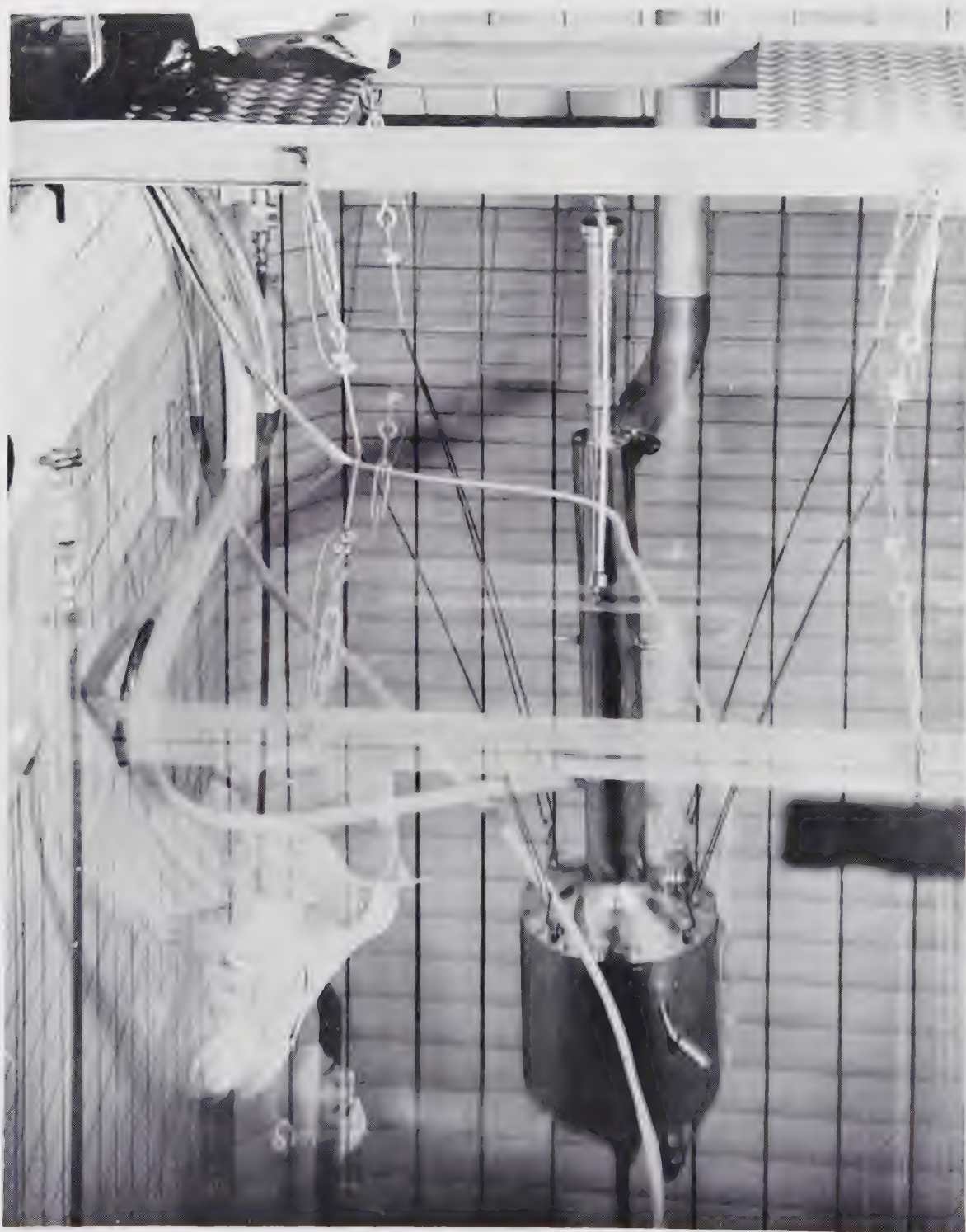


Figure 30 : Four "TETARD" en pile.

e) Le manchon de pompage

Constitué d'un cylindre en Acier inoxydable ($\varnothing$: 100 x 108, L : 2 m), il se termine par une cheminée sur laquelle s'adapte un entonnoir permettant l'introduction sans heurts de la gaine G_2 . A l'intérieur, un tube assure le guidage de cette dernière.

La figure 30 représente le four immergé dans la piscine.

2° - Repérage de la température

On repère la température à l'aide de thermocouples d'alliages Tungstène-Rhénium, préalablement étalonnés hors pile, et placés dans la gaine G_1 (porte-thermocouples étalons) installée à demeure dans le four.

3° - Installation du four

Afin de se protéger de la radioactivité de la gaine G_2 lorsque, une fois irradiée, elle est introduite dans le four TETARD, celui-ci est placé à 3 mètres de profondeur dans l'eau de la piscine.

Le maintien du four est assuré par des câbles fixés à une passerelle installée au-dessus de la piscine. Ce système permet un accès facile de la cheminée dont l'ouverture se trouve à quelques centimètres au-dessus du niveau de l'eau. Les différents cordons de liaison sont sous gaine étanche.

4° - Caractéristiques du four

La figure 31 met en évidence, en fonction de la température, les variations de la puissance consommée et de l'intensité traversant le résistor.

La courbe de la figure 32 traduit l'inertie thermique du four en faisant apparaître l'évolution de la température de la gaine G_2 en fonction du temps, l'élément chauffant n'étant plus alimenté à partir de 1500°C .

III. LES GAINES PORTE-THERMOCOUPLES

Afin que les thermocouples étalons et échantillons se trouvent dans des conditions thermiques identiques, les parties chaudes des gaines qui les contiennent doivent avoir la même configuration. Celles-ci ont été élaborées en fonction des critères d'utilisation de la gaine destinée aux échantillons. En effet, cette dernière doit :

- avoir des dimensions déterminées par l'échauffement nucléaire et l'encombrement autorisé dans le four HEBE,
- permettre l'installation du maximum de thermocouples,
- être constituée de matériaux assurant une bonne tenue mécanique et thermique à 2000°C ,
- rendre aisés les divers montages, manutentions et raccordements.

1° - La gaine porte-thermocouples échantillons (G_2)

a) La zone chaude

Elle se compose :

- d'une tige centrale supportant les efforts axiaux,
- d'un corps qui comporte quatre rainures cylindriques où se logent les thermocouples,
- d'une série de bagues entourant l'ensemble pour en assurer sa rigidité,
- d'un embout hémisphérique obturant l'extrémité inférieure.

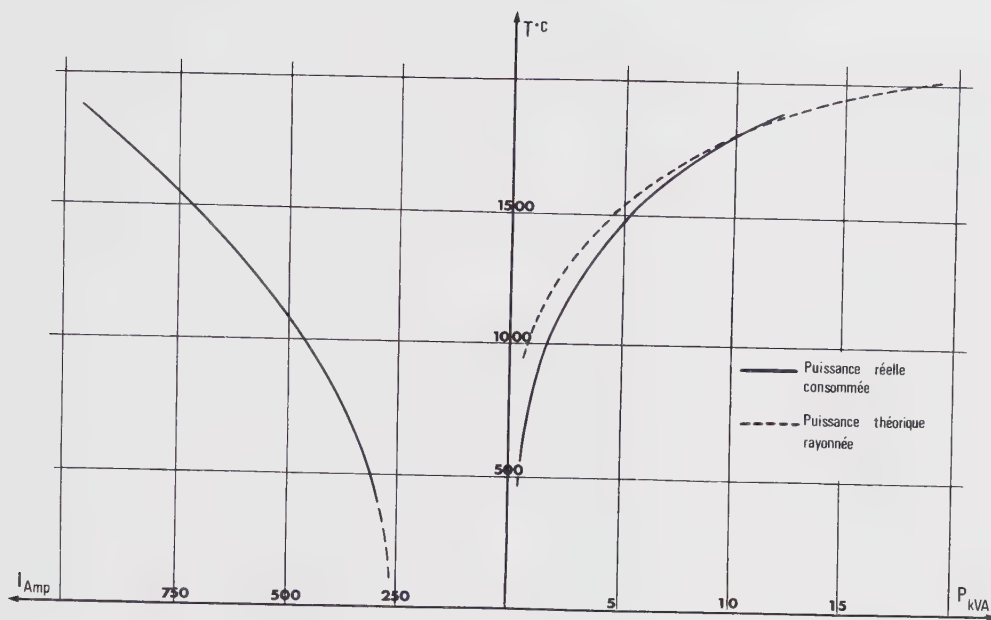


Figure 31

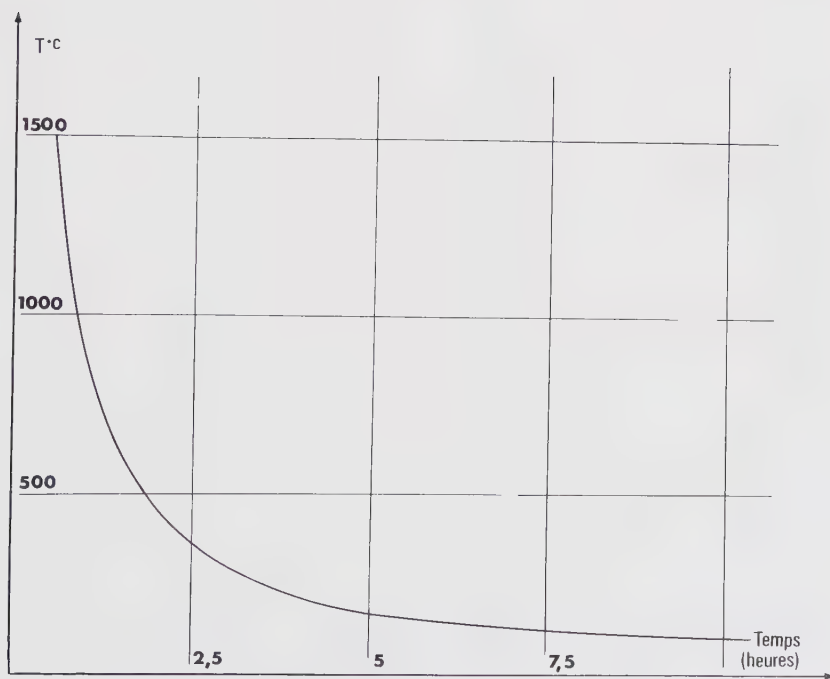


Figure 32 : Courbe de refroidissement.

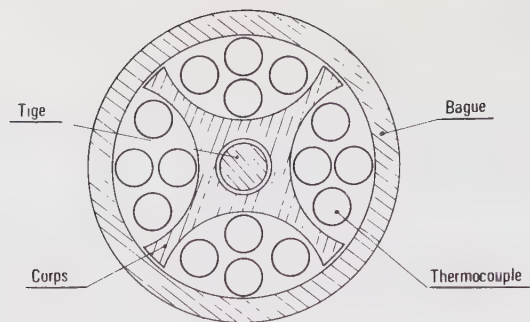


Figure 33 : Gaine porte-thermocouples

Le choix du Molybdène pour la réalisation de ces pièces et la présence des thermocouples et des perles isolantes confèrent à l'ensemble une masse de 45 g/cm avec les dimensions suivantes :

- diamètre extérieur : 30 mm
- longueur (déterminée par l'allure du flux neutronique) : 600 mm.

La figure 33 montre cette partie de la gaine au cours des divers stades de montage, ainsi que le schéma de sa section. Une telle configuration autorise la mise en place de 16 thermocouples d'un diamètre maximum de 4 mm.

b) Le tube de liaison

La partie chaude est fixée à un tube en Acier inoxydable ($\emptyset$: 36 mm x 40 mm , L : 2150 mm) par un dispositif à baïonnette qui élimine les pièces saillantes nuisibles à la bonne introduction de la gaine dans le four, et assure à l'ensemble une excellente rigidité et un encombrement réduit.

c) Le dispositif de raccordement

Les fils des thermocouples sont soudés aux embouts d'une pastille SOCAPEX à 39 passages fixée sur un boîtier solidaire du tube de liaison, l'étanchéité étant réalisée au moyen d'une coulée d'araldite.

2° - La gaine porte-thermocouples étalons (G_1)

Elle est uniquement constituée d'une partie chaude (L : 250 mm) et d'un dispositif de raccordement identiques à ceux de la gaine décrite précédemment.

=====

IV. LES DISPOSITIFS ANNEXES

1° - Le groupe de pompage

Le maintien du vide à une pression inférieure à 10^{-3} mm Hg, dans un volume d'une centaine de litres (four, manchon, canalisation) lors des dégazages à haute température, exige l'emploi d'un groupe de pompage relativement important qui comprend :
une pompe primaire à palettes d'un débit de $60 \text{ m}^3/\text{h}$ et une pompe secondaire à diffusion d'huile d'un débit de 1000 l/sec .

On mesure la pression à l'aide de deux jauges, l'une montée directement sur le groupe, l'autre à l'extrémité basse du four.

2° - L'alimentation électrique

Un dispositif à self-saturable débite sur un transformateur abaisseur de tension qui alimente l'élément chauffant sous 20 Volts, 1000 Ampères, pour la puissance maximum.

3° - Mesure de la F.E.M.

Comme dans les cas précédents, un enregistreur MECI, type Speedomax à 12 voies, assure le relevé des F.E.M.. Un système de commutation permet la distribution des différents thermocouples sur les 12 voies disponibles.

B - EXPERIMENTATION

=====

I. GENERALITES

Afin de conférer un caractère statistique à l'étude du comportement des thermocouples sous flux, nous avons procédé à deux séries d'irradiations uniquement sur des couples W. 5 % Re/W. 26 % Re.

1° - Chronologie

Conformément au principe de la manipulation, les diverses opérations se sont déroulées dans l'ordre suivant :

a) 1ère série d'irradiations

- Préétalonnage,
- 1er cycle d'irradiation (3 semaines)
- Transfert et étalonnages (E_1 et E'_1)
- 2ème cycle d'irradiation (3 semaines)
- Arrêt de la pile (1 semaine)
- 3ème cycle d'irradiation (2 semaines)
- Arrêt de la pile et désactivation (4 semaines)
- Transfert et étalonnage (E_2 et E'_2)
- Dosimétrie

b) 2ème série d'irradiations

- Préétalonnage,
- 1er cycle d'irradiation (3 semaines)
- Arrêt de la pile (1 semaine)
- 2ème cycle d'irradiation (3 semaines)
- Arrêt de la pile (1 semaine)
- 3ème cycle d'irradiation (3 semaines)
- Arrêt de la pile et désactivation (20 semaines)
- Transfert

2° - Répartition des thermocouples

Compte tenu des emplacements prévus dans la gaine G₂, les thermocouples suivants ont été irradiés :

a) 1ère série d'irradiations

- 4 de fils nus ϕ : 0,5 mm (N 0,5)
- 2 de fils nus ϕ : 0,3 mm (N 0,3)
- 5 gainés Tantale ϕ_{ext} : 1,3 mm (G 1,3)
- 1 gainé Tantale ϕ_{ext} : 1,8 mm (G 1,8)

b) 2ème série d'irradiations

- 2 de fils nus ϕ : 0,5 mm
- 1 de fils nus ϕ : 0,3 mm
- 2 gainés Tantale ϕ_{ext} : 1,8 mm
- 4 gainés Tantale ϕ_{ext} : 1,3 mm
- 2 gainés Niobium ϕ_{ext} : 1,8 mm
- 2 gainés Tantale "schoopé" Molybdène ϕ_{ext} : 1,8 mm
- 1 de fils nus ϕ : 0,5 mm (Molybdène/Niobium)

3° - Remarques

a) Nous verrons ultérieurement que les conditions dans lesquelles se sont déroulées les irradiations ont eu pour effet de produire, pendant leur durée, un dégagement d'Oxygène dans le four HEBE. Ceci a conduit à la formation d'oxyde de Tantale pulvérulent et extrêmement radioactif. De ce fait, l'activité de la gaine porte-thermocouples échantillons, et la contamination qu'elle a provoquée, nous ont contraint à :

- réduire le nombre des transferts de la gaine entre les fours HEBE et TETARD, c'est-à-dire celui des étalonnages après irradiation,
- diminuer, dans la deuxième série d'irradiations, la présence ou l'action du Tantale en "schoopant" les gaines de Tantale avec du Molybdène, ou encore par l'utilisation de gaines en Niobium,
- augmenter le temps séparant la fin d'une irradiation et l'étalonnage de façon à abaisser l'activité des éléments contenus dans la gaine G₂ par décroissance naturelle.

b) La mesure de dosimétrie est commune aux deux séries d'irradiations car les emplacements respectifs du four au coeur de la pile ont des caractéristiques identiques.

II. LES PREETALONNAGES

Avant l'irradiation, les thermocouples échantillons, préalablement soumis à un recuit, ont été étalonnés entre 1000°C et 1850°C à l'aide des thermocouples contenus dans la gaine G₁. La difficulté d'obtenir, à basse température, une stabilisation assurant un relevé précis des F.E.M. oblige à faire les mesures uniquement au-dessus de 1000°C. Pour des raisons de sécurité, nous nous sommes fixé la température maximum de travail à 1850°C.

On n'a pas tenu compte de la température de la soudure froide (température des jonctions : fils des thermocouples - fils de liaison). En effet, celle-ci restant constante, il est inutile de réduire la précision des résultats en apportant des corrections supplémentaires, les mesures étant essentiellement comparatives.

III. LES IRRADIATIONS

Après le préétalonnage, la gaine porte-thermocouples échantillons a été placée dans le four HEBE de telle manière que son extrémité inférieure se trouve au niveau du plan médian du coeur du réacteur (flux maximum).

1° - Atmosphère

Bien que le four HEBE ait été mis sous atmosphère d'Hélium pur, à une pression de $0,750 \text{ kg/cm}^2$ restée constante pendant la durée des irradiations, nous avons constaté une oxydation importante des éléments de la gaine G_2 . Cette oxydation a, sans doute, été provoquée par la décomposition partielle de la glucine non stoéchiométrique et la libération, sous l'effet de l'irradiation à température élevée, de l'Oxygène adsorbé dans l'acier inoxydable du four HEBE.

2° - Dosimétrie

a) Flux neutronique

Les caractéristiques de l'emplacement choisi pour les différentes irradiations ont été déterminées sur une maquette reproduisant fidèlement la gaine G_2 , et placée dans les mêmes conditions. Des dosimètres situés le long de la maquette ont permis de mesurer les flux thermique et rapide. La figure 34 donne la valeur de ces flux en fonction de la distance au plan médian.

b) Temps d'irradiation et flux intégrés

La durée des irradiations et les flux intégrés correspondants se décomposent de la manière suivante pour les deux séries :

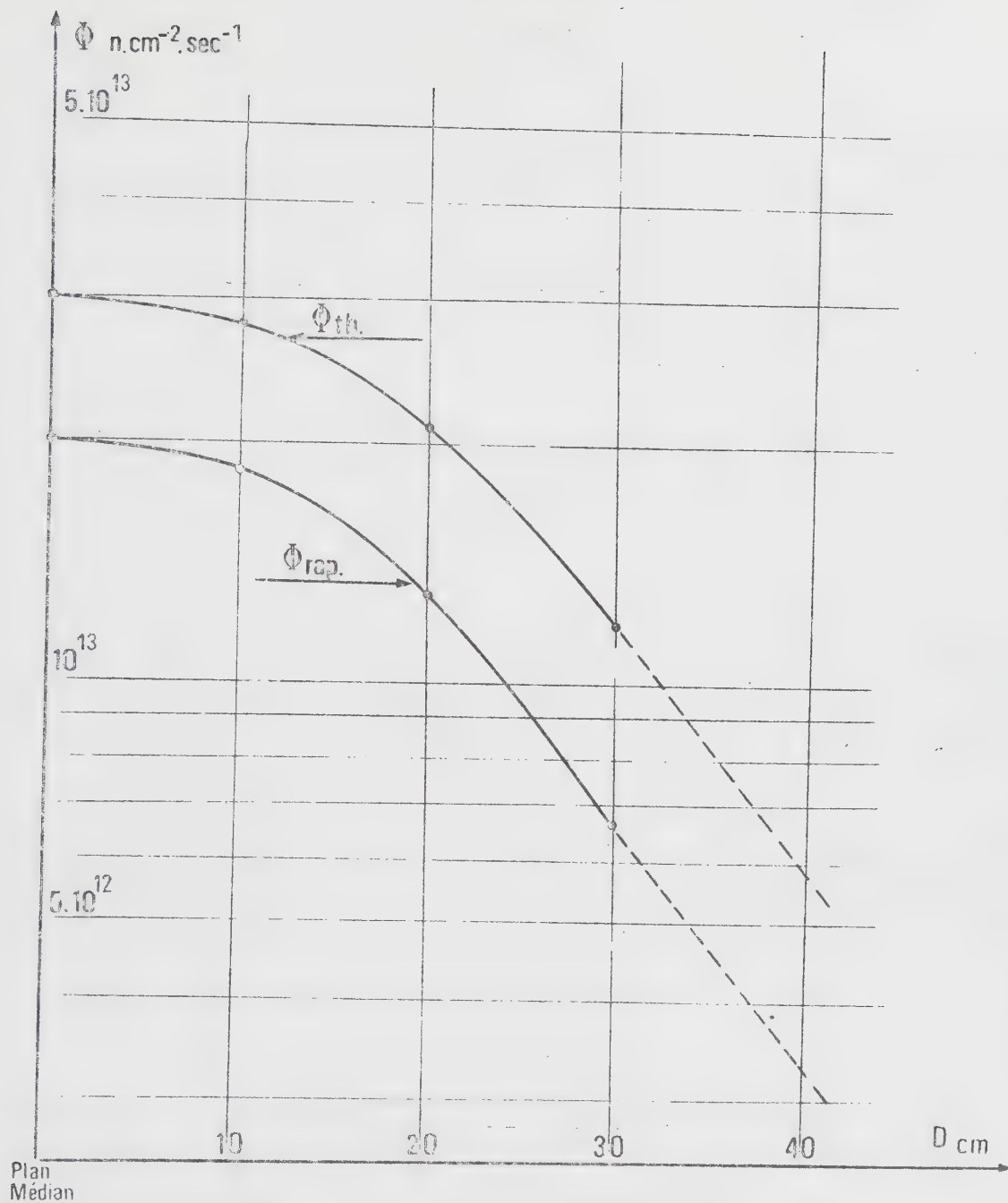


FIGURE 34. GRADIENT DE FLUX.

	1ère Série d'irradiations		2ème Série d'irradiations	
	Temps (sec.)	ϕ_i (n.cm ⁻²)	Temps (sec.)	ϕ_i (n.cm ⁻²)
1er cycle	1,75.10 ⁶	5,3.10 ¹⁹	1,79.10 ⁶	5,4.10 ¹⁹
2ème cycle	1,66.10 ⁶	5,0.10 ¹⁹	1,79.10 ⁶	5,4.10 ¹⁹
3ème cycle	1,23.10 ⁶	3,7.10 ¹⁹	1,60.10 ⁶	4,8.10 ¹⁹
Total	4,64.10 ⁶	1,4.10 ²⁰	5,18.10 ⁶	1,6.10 ²⁰

3° - Température d'irradiation

Nous avons enregistré, simultanément, les F.E.M. délivrées par les thermocouples échantillons et les thermocouples (Chromel/Alumel) installés à demeure dans le four HEBE.

Les températures moyennes repérées par les thermocouples échantillons ont été d'environ 1250°C pour la 1ère et 2ème séries d'irradiations. Les fluctuations en température, observées au cours d'un cycle sur les enregistrements, sont inférieures à 1,5%.

La configuration géométrique et le contenu de la gaine, ainsi que les conditions expérimentales, n'ont pas permis de déterminer le gradient thermique des thermocouples. Toutefois, l'échauffement étant produit par le flux rapide, on peut penser que celui-ci et la température se répartissent, de manière semblable, le long de la gaine.

IV. ETALONNAGES APRES IRRADIATION

Nous avons procédé à deux étalonnages (E_n et E'_n) des thermocouples irradiés dans les mêmes conditions que le préétalonnage. Un premier chauffage, après irradiation, doit en effet assurer la régénération des éléments constituant les thermocouples, et éliminer ainsi l'action des phénomènes à caractère réversible.

Les mesures susceptibles de rendre compte du comportement des thermocouples irradiés sont les enregistrements pendant les irradiations et les courbes d'écart. Toutefois, avant d'en aborder le développement, il est nécessaire de faire part des difficultés rencontrées lors des différentes manipulations qui ont eu pour conséquence de réduire considérablement le nombre des résultats attendus.

I. REMARQUES PRELIMINAIRES

1° - Première série d'irradiations

Des défauts dans la fabrication des thermocouples et le montage de la gaine G_2 se sont traduites par des anomalies ou des dérives sur les courbes d'étalonnage réalisées au cours du premier chauffage dans le four TETARD. Aussi, avons-nous été contraint de considérer comme seules valables les indications fournies par quatre (2 T.C. N 0,5 - 1 T.C. G 1,3 - 1 T.C. N 0,3) des douze thermocouples montés, puisque conformes à celles des thermocouples étalons.

2° - Deuxième série d'irradiations

Les opérations de transfert de la gaine G_2 , soumises aux impératifs de la sécurité, ont été considérablement compliquées et rendues difficiles en raison de l'importante radioactivité qu'elle a présentée même après la longue période de désactivation (20 semaines). Aussi, la rapidité des manoeuvres pour transférer, du four HEBE au four TETARD, la gaine G_2 , fragilisée par les chauffages à haute

température (préétalonnages) et les conditions d'irradiation (oxydation), a-t-elle provoqué sa rupture au niveau de la partie chaude en Molybdène, supprimant ainsi toute possibilité d'étalonnage après irradiation.

II. ENREGISTREMENTS PENDANT LES ETALONNAGES

Les températures indiquées par les différents thermocouples-échantillons étant sensiblement identiques (écart $< 10^{\circ}\text{C}$ imputable à la géométrie gaine-flux), nous avons consigné sur le tableau de la figure 35a les moyennes et les variations, par rapport à celles-ci, des températures correspondant aux F.E.M. enregistrées au cours des divers cycles de la 1ère et 2ème série. Un point de comparaison, très approximatif, nous est fourni par l'un des thermocouples (Chromel/Alumel) de régulation du four HEBE qui, par suite de son emplacement, reflète le mieux la valeur du flux.

Les courbes d'enregistrement F.E.M. = $f(\text{temps})$ n'ont pas été représentées : la réduction d'échelle ne pouvant traduire convenablement le comportement des thermocouples. Toutefois, leur dépouillement et l'analyse du tableau précédent permettent de formuler les observations suivantes :

- les fluctuations de température, suivies de façon identique par tous les thermocouples et dues aux variations de flux, masquent toute dérive des thermocouples-échantillons au cours d'un même cycle,
- les températures atteintes en fin de chaque cycle sont toujours très voisines ($\sim 3^{\circ}\text{C}$) des températures moyennes repérées,
- la différence des températures moyennes entre deux cycles successifs devraient, en fonction d'une part des deux remarques ci-dessus et d'autre part des valeurs indiquées par le thermocouple de HEBE,

		T.C. ECHANTILLONS		T.C. REGULATION HEBE	
		Température moyenne °C	Variations de température ± °C	Température moyenne °C	Variations de température ± °C
1 ^{ère} S E R I E	1 ^{er} Cycle	1270	10	815	1
	2 ^e Cycle	1250	20	810	7
	3 ^e Cycle	1250	13	805	15
2 ^{ème} S E R I E	1 ^{er} Cycle	1265	10	815	7
	2 ^e Cycle	1230	10	830	7
	3 ^e Cycle	1150	15	810	2

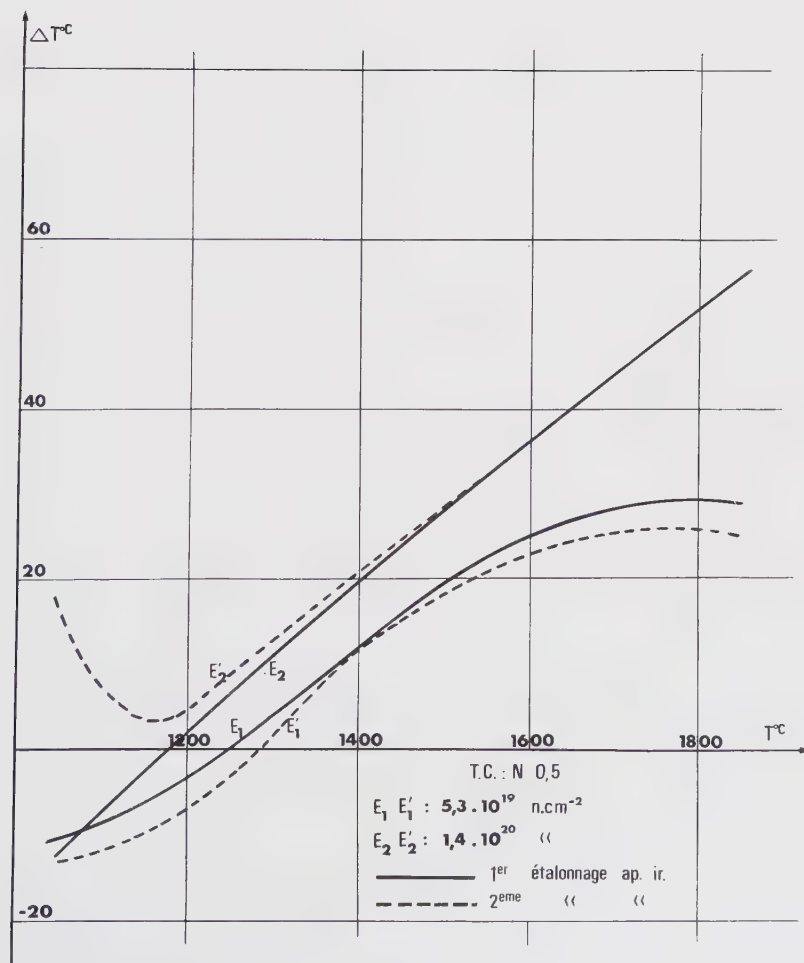


Figure 35 a.

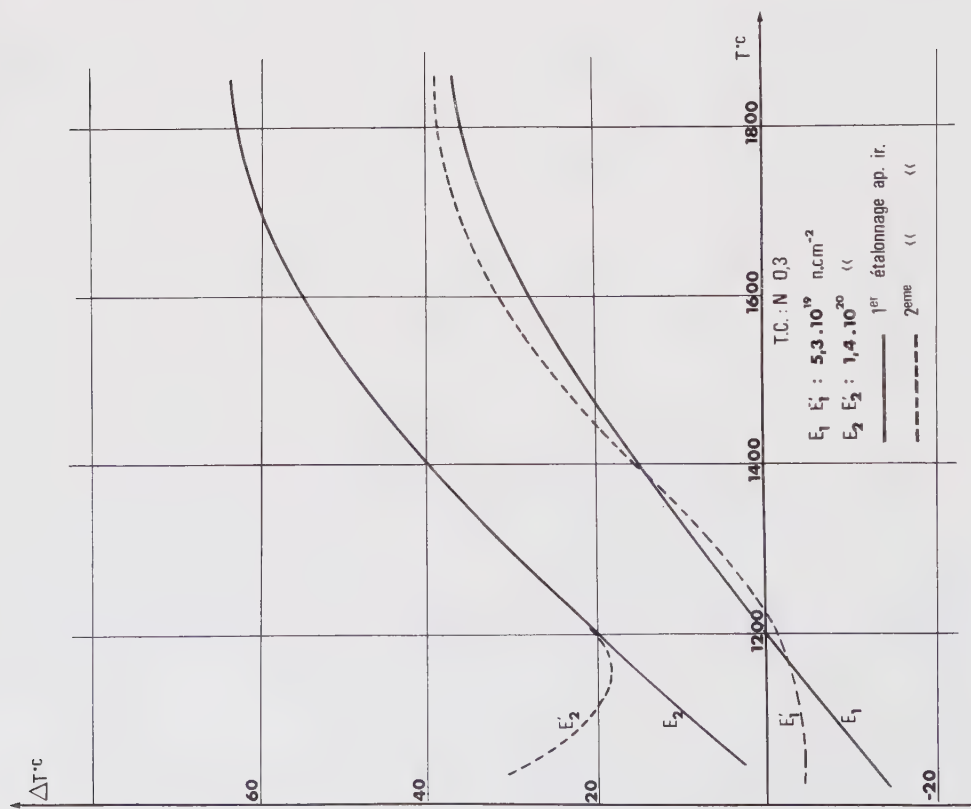


Figure 35 b.

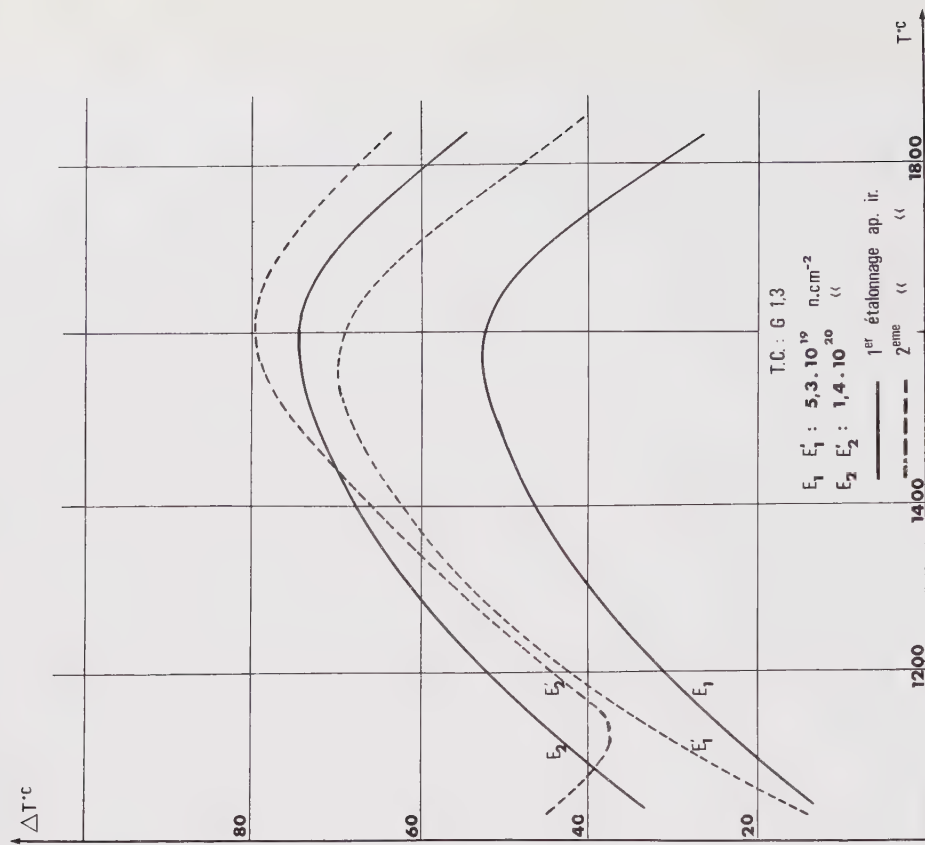


Figure 35 c.

justifier la dérive des thermocouples au cours du temps. En fait, dans la 1ère série d'irradiations, elle ne traduit aucune évolution notable, contrairement aux courbes d'écart (cf. § III). Dans la 2ème série, ces différences de température sont plus marquées, mais il ne nous a pas été possible de les comparer à celles fournies par les courbes d'écart correspondantes puisque les étalonnages après irradiation n'ont pu avoir lieu.

III. LES COURBES D'ECART

Nous rappellerons que (page 37) les courbes d'écart représentent, pour un thermocouple donné, la différence $\Delta T^\circ = f(T^\circ C)$ entre le préétalonnage et les divers étalonnages après irradiation.

Les figures 35a, 35b et 35c montrent les courbes d'écart obtenues pour les quatre thermocouples de la 1ère série (les deux thermocouples constitués de fils nus de $\varnothing$ 0,5 mm fournissant des valeurs identiques).

On constate, d'après ces résultats, que :

- l'évolution des thermocouples se traduit, dans tous les cas, par une diminution de la F.E.M. délivrée au-dessus de 1300°C (cette valeur correspondant approximativement à la température d'irradiation),
- la dérive croît avec le temps d'irradiation et est d'autant plus importante que les fils constituant le thermocouple sont de faible diamètre,
- l'influence du 1er chauffage ou étalonnage après irradiation (destiné à assurer la régénération) est moins sensible lorsque la durée de cette dernière augmente.

IV. CONCLUSION

L'absence de courbes d'écart dans la 2ème série d'irradiations nous a privé d'un certain nombre d'informations qui auraient sans doute permis de conférer à cette étude un caractère statistique. Cependant, la reproductibilité des indications recueillies et les observations faites à leur sujet nous conduisent à penser que les phénomènes réversibles et irréversibles ayant altéré les thermocouples sont multiples et que leurs influences relatives ne peuvent pas toujours être facilement différenciées.

D - FACTEURS D'INFLUENCE

Avant d'étudier les différents facteurs contribuant à l'évolution des thermocouples irradiés dans les conditions décrites précédemment, il convient de rappeler le rôle joué par les positions et extensions relatives du gradient de température dans lequel est placé le thermocouple à étalonner, et de la zone où il y a eu modification de structure dans les fils qui le constituent. En effet, suivant les cas limites, représentés sur la figure 36, les variations subies pourront ou non être décelées.

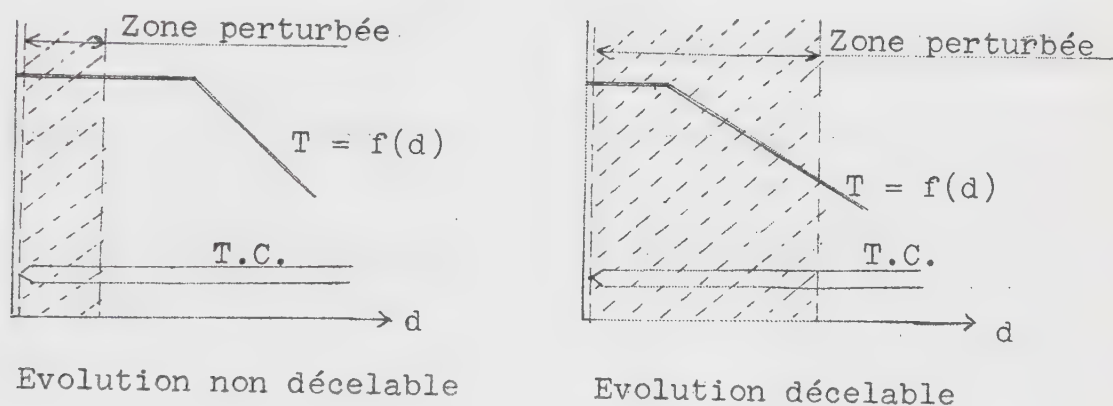


Figure 36

I. TRANSMUTATIONS

Divers travaux (24 à 28) ont montré que les transmutations nucléaires sont, par les variations de composition qu'elles provoquent au sein des matériaux irradiés, l'un des principaux facteurs ~~provoquant~~ l'évolution des thermocouples.

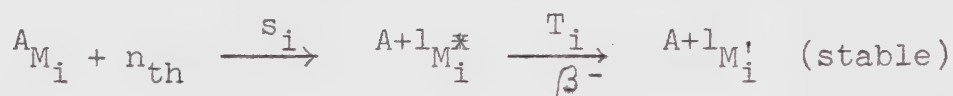
Des études théoriques ont, par ailleurs été entreprises (32) pour déterminer, à l'aide des formules de Mott (7) et

Domenicalli (8) les dérivées produites par les changements de composition sur les F.E.M. délivrées par les thermocouples.

Toutefois, la difficulté de connaître la répartition énergétique (Flux = f(énergie)) et géométrique du flux, par rapport à l'échantillon, rend pratiquement impossible le calcul exact du pourcentage d'éléments qui se sont transmutés.

Dans le cadre de notre étude, nous nous sommes limité à l'action d'un flux thermique unidirectionnel et d'énergie connue (0,025 eV), afin de donner un ordre de grandeur des compositions obtenues après irradiation.

Le principe du calcul est le suivant :
dans une réaction nucléaire du type :



où ${}^A_{M_i}$ est l'un des isotopes de l'élément irradié A_M , les nombres de p.p.m. de ${}^{A+1}_{M_i^*}$ et ${}^{A+1}_{M_i'}$ formés pendant le temps d'irradiation t , sont donnés par :

$$\text{Nombre de p.p.m. de } {}^{A+1}_{M_i^*} = N = \frac{10^6 \cdot s_i \cdot n_i \cdot \phi_0}{s \cdot n^2 \cdot a \cdot L_i} \cdot \left(1 - \exp(-L_i \cdot t) \right)$$

$$\left(1 - \exp(-s \cdot n \cdot a) \right)$$

$$\text{Nombre de p.p.m. de } {}^{A+1}_{M_i'} = N' = N \cdot \left(\frac{L_i \cdot t}{1 - \exp(-L_i \cdot t)} - 1 \right)$$

avec :

n_i : nombre d'atomes de ${}^A_{M_i}$, par cm^3

n : nombre d'atomes de A_M , par cm^3 ($n = \sum_i n_i$)

s_i : section efficace de ${}^A_{M_i}$ aux neutrons thermiques, en barns

s : section efficace moyenne de A_M aux neutrons thermiques, en barns

L_i : constante radioactive de ${}^{A+1}_{M_i^*}$ ($L_i = 1/T_i$)

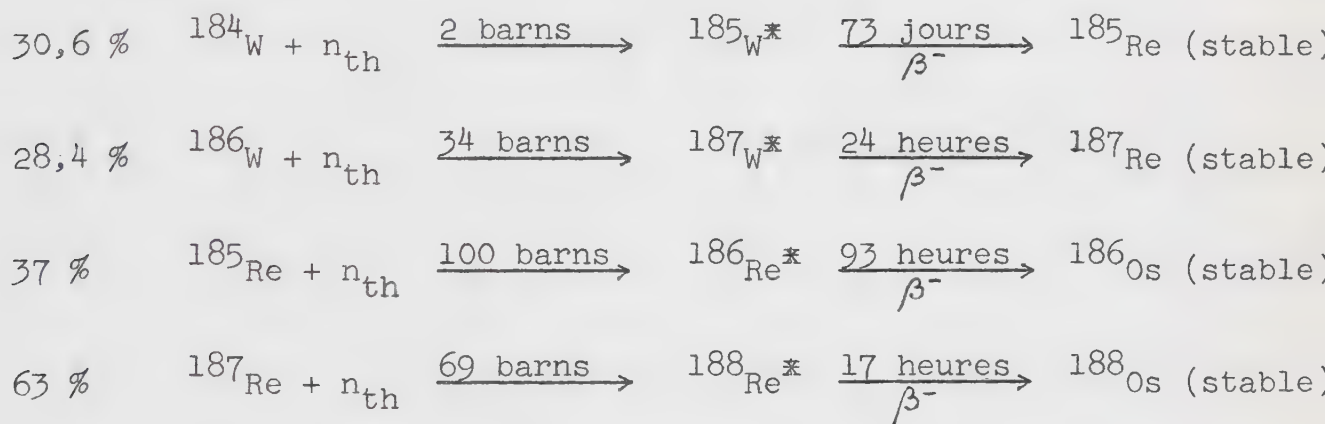
a : profondeur de l'échantillon de A_M , traversée par le flux.

ϕ_0 : flux thermique incident, en $\text{n.cm}^{-2}.\text{sec}^{-1}$

Remarque : Dans ce calcul, nous n'avons pas tenu compte des transmutations (considérées comme négligeables) des éléments tels que $^{A+1}M_i^*$, et du fait que $n_i = n_{i0} - m_i$ (n_{i0} étant le nombre d'atomes de $^A M_i$ avant irradiation, et m_i le nombre d'atomes de $^{A+1}M_i^*$ formés) : en effet, nos conditions expérimentales permettent d'effectuer l'approximation $n_i = n_{i0}$.

1° - Réactions nucléaires

Le Tungstène et le Rhénium étant les seuls éléments constituant les fils des thermocouples, les réactions nucléaires susceptibles de provoquer des variations notables de composition sont les suivantes :



2° - Composition après irradiation

La figure 37 traduit, en fonction de la distance au plan médian (niveau de la soudure chaude des thermocouples), les variations de composition (en p.p.m.) des fils de W. 5 % Re et W. 26 % Re ($\varnothing : 0,3 \text{ mm}$) par rapport à l'état initial, pour 1300 heures d'irradiation (1ère série) avec les flux indiqués précédemment. Ces résultats sont en parfait accord avec les courbes $\Delta\% = f(\text{temps, flux})$ calculées par D.N. Hall (33) pour les mêmes matériaux.

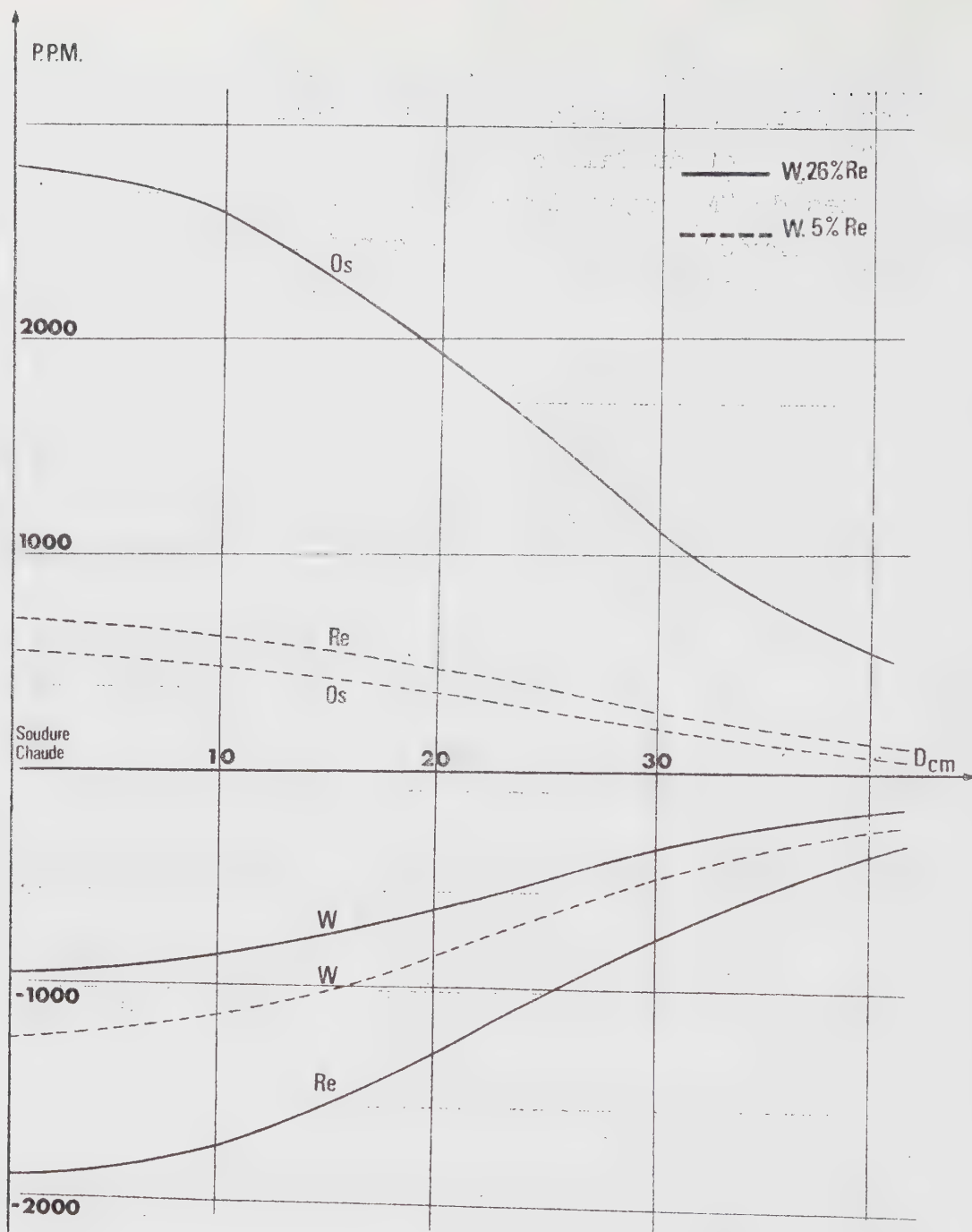


FIGURE 37. VARIATIONS DE COMPOSITION.

Remarques

- Le calcul pour des fils de 0,5 et 0,2 mm conduit à des valeurs sensiblement identiques (écart $< 3 \%$).
- On peut supposer qu'en tenant compte des neutrons intermédiaires (dont on ignore la distribution) qui présentent des sections de résonance extrêmement élevées pour des énergies données et sont, de ce fait, rapidement atténués, les variations de composition obtenues pour les différents diamètres de fils conduiraient à des écarts plus considérables.
- L'étude réalisée en utilisant un flux isotrope, sans doute plus conforme aux conditions expérimentales, fournirait des valeurs plus importantes.

3° - Contribution à l'évolution des thermocouples

Le caractère irréversible des effets produits par les transmutations et le fait qu'ils sont fonction croissante du temps d'irradiation correspondent aux observations formulées sur les courbes d'écart, d'autant que ces effets sont, de par leur étendue, parfaitement décelables.

II. PERTURBATION DU RESEAU

1° - Mécanisme (34)

L'irradiation à température élevée provoque, par la création de défauts (lacunes, interstitiels, dislocations), la perturbation du réseau et augmente ainsi le processus de diffusion des atomes. Toutefois, l'équilibre thermodynamique, vers lequel tend cet état perturbé, assure la recombinaison des lacunes et interstitiels au fur et à mesure de leur formation, mais entraîne une variation de composition des alliages en les homogénéisant

au voisinage de la soudure chaude.

2° - Conséquence sur les thermocouples

a) La création de défauts

Celle-ci s'opère sur toute la zone où le flux est appliqué. Néanmoins, l'annihilation des défauts au cours des irradiations et le recuit du premier étalonnage après irradiation doivent faire totalement disparaître leur effet (variation de la résistivité), pour ne plus être observé pendant le deuxième étalonnage.

b) La diffusion

Phénomène essentiellement irréversible, il n'intéresse que le voisinage immédiat de la soudure chaude. En effet, les conditions des irradiations (température et temps), ainsi que les faibles valeurs des coefficients de diffusion du Tungstène et du Rhénium dans le Tungstène, ne permettent pas de créer une zone de diffusion supérieure à la région où la température est constante dans l'élément chauffant du four TETARD (10 cm environ). De ce fait, bien que contribuant au changement de structure des thermocouples, l'action de la diffusion ne peut être décelée.

III. AUTRES FACTEURS D'INFLUENCE

1° - L'échauffement nucléaire

Les étalonnages après irradiation étant faits avant désactivation totale des éléments de la gaine, l'échauffement nucléaire qu'ils provoquent crée une dissymétrie thermique entre les gaines G_1 et G_2 . Ce phénomène, sensible à basse température ($T < 250^\circ\text{C}$), n'intervient pas au-delà, où la puissance rayonnée par le résistor est de loin supérieure à celle ainsi fournie ($\sim 0,01$ W).

2° - L'oxydation

La présence d'Oxygène dans le four HEBE pendant les irradiations est susceptible de perturber la structure des thermocouples par formation d'une couche superficielle d'oxyde sur les fils. Toutefois, la température d'irradiation, nettement supérieure à celle de volatilisation des oxydes, devrait assurer leur disparition au fur et à mesure de leur formation.

Mais ce raisonnement, valable pour les parties chaudes de la gaine, est en défaut dans les zones plus froides où les oxydes ne pouvant se volatiliser provoquent ainsi une diffusion d'Oxygène dans le réseau.

3° - Comportement de la glucine

Divers travaux (35 à 37) ont montré que la glucine sous irradiation est l'objet de transformations (variation du paramètre du réseau, diminution de la conductivité thermique, modification des propriétés mécaniques,...) qui sont, cependant, annihilées par chauffage hors flux.

De telles transformations, principalement la chute de résistivité, risquent d'être beaucoup plus sensibles sur les thermocouples gainés, où la glucine est en contact intime avec les fils, d'autant que l'étendue de la zone où elles se produisent est supérieure à celle de la région où elles sont susceptibles d'être éliminées.

A N N E X E

COMPORTEMENT DES THERMOCOUPLES D'ALLIAGES REFRACTAIRES SOUS IRRADIATION, EN PRESENCE DE BIOXYDE D'URANIUM

L'utilisation à haute température des thermocouples gainés dans les éléments combustibles d' UO_2 , sous irradiation, a fait l'objet de divers travaux (38 à 40) dont il nous a paru intéressant de donner ici un bref résumé. En effet, l'emploi de ces thermocouples, dans de telles conditions, est limité par l'influence des facteurs autres que l'irradiation, et dont les causes ne sont pas encore entièrement élucidées.

1° - Observations réalisées

On constate que la F.E.M. délivrée par les thermocouples devant repérer la température de l'élément combustible, dans lequel ils se trouvent décroît sensiblement après chaque élévation de puissance du réacteur. Ce phénomène reproductible ne modifie nullement leur sensibilité. Toutefois, après un temps d'irradiation, très variable suivant l'expérience considérée, certains d'entre eux ne délivrent aucune F.E.M.. Un tel comportement, situé en général entre 1400° et 2200°C , peut se traduire par les courbes représentées sur la figure 38.

2° - Interprétation

Il résulte de ces observations que, en présence d' UO_2 , deux phénomènes distincts apparaissent :

a) Dérive de la F.E.M.

Les dérives étant de loin supérieures à celles que peuvent provoquer les chocs thermiques (mise en puissance et chutes

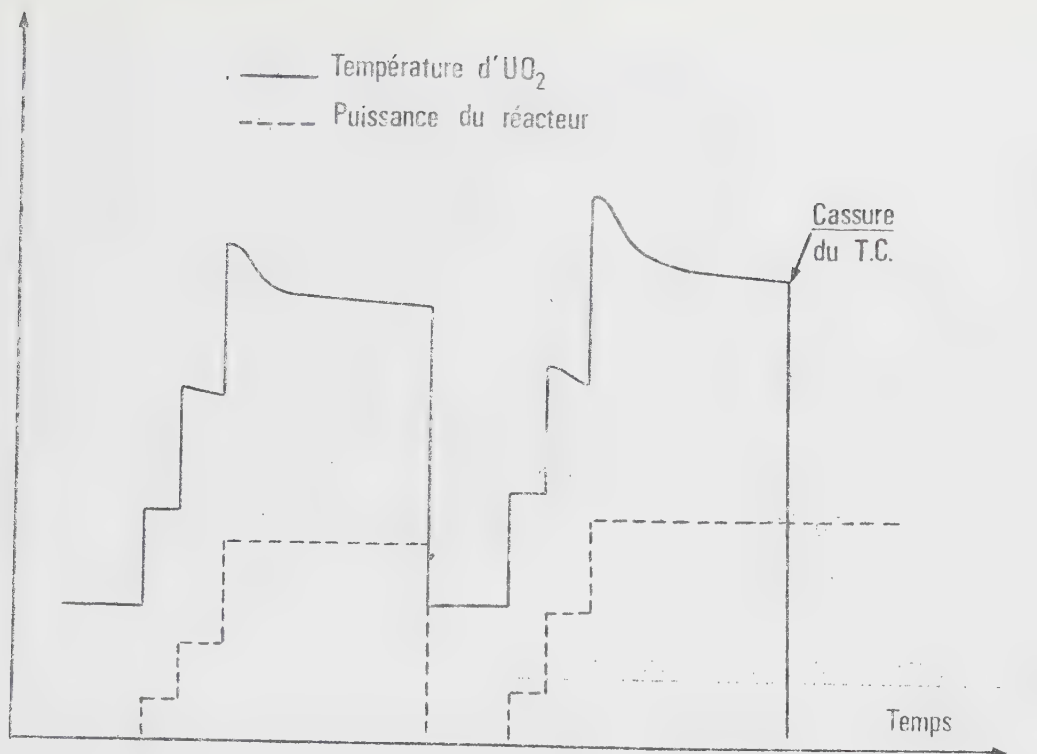


FIGURE 38.

de barres) et les irradiations, on peut apparemment mettre hors de cause les thermocouples, d'autant que leur sensibilité n'est pas modifiée et que ces dérives sont reproductibles. Il semble donc que ce phénomène soit imputable à divers facteurs provoquant simultanément : d'une part, une baisse de la température de l'élément combustible par perte de réactivité due à l'empoisonnement de l' UO_2 par le Xénon et le Samarium, et d'autre part, une modification de l'emplacement du thermocouple par suite de dilatations produites par l'élévation de température lors des mises en puissance ; de ce fait, la perturbation du contact thermocouple- UO_2 se traduit par une diminution de la température repérée.

b) Détérioration du thermocouple

Après irradiation, la récupération de l'élément combustible permet de constater que les thermocouples mis "hors-circuit" présentent une attaque de la gaine par l' UO_2 , provoquant leur détérioration partielle ou complète. Ce phénomène est essentiellement fonction de la température et du temps d'irradiation, ainsi que du matériau constituant la gaine (Molybdène ou Tantale). De ces deux métaux, le Molybdène apparaît d'ailleurs comme le moins réactif.

C O N C L U S I O N

=====

L'étude "hors pile" des thermocouples d'alliages Tungstène-Rhénium nous a prouvé que, en les utilisant avec certaines précautions, ils constituaient un moyen particulièrement efficace et précis pour repérer des températures jusqu'à environ 2300°C. En effet, les F.E.M. qu'ils délivrent, nullement altérées par de longues périodes de chauffage, sont très sensiblement modifiées par les chocs thermiques et par la présence de certains gaz, sans toutefois que cette dérive excède les limites de la zone de dispersion d'origine purement thermoélectrique. Par ailleurs, la mesure des temps de réponse et la mise au point d'alliages assurant la compensation de soudure froide permet d'élargir l'éventail des nombreuses applications industrielles de ce type de thermocouples.

Les résultats de l'étude "en pile" ont montré que les thermocouples W. 5 % Re/W. 26 % Re, sous irradiation, sont l'objet de dérives importantes attribuées principalement aux variations de composition provoquées par les transmutations nucléaires qui limitent la précision et la durée d'emploi de ce type de thermocouples sous flux neutroniques. Aussi, dans la perspective d'une utilisation prolongée en pile, nous a-t-il paru intéressant de proposer un nouveau type de thermocouples constitués de matériaux de très faible section efficace, présentant une bonne compatibilité avec le Bioxyde d'Uranium et répondant aux critères habituellement requis.

La détermination, à priori, de ces substances, nous est fournie par la comparaison des sections efficaces moyennes aux neutrons thermiques (en barns) des métaux réfractaires, reportées sur le tableau ci-dessous. On constate que le Molybdène et le Niobium présentent les valeurs les plus faibles.

Rhénium	Tantale	Tungstène	Molybdène	Niobium
84	21,3	19,2	2,5	1,1

Par ailleurs, l'étude des courbes traduisant les variations du pouvoir thermoélectrique absolu (41)(42) et de la résistivité (43) en fonction de la température, représentées respectivement sur les figures 39 et 40, permet de constater que le Molybdène joue vis-à-vis du Niobium un rôle identique à celui du Tungstène par rapport au Rhénium. Il faut, enfin, noter que :

- d'une part le Molybdène et le Niobium occupent, comme le Tungstène et le Rhénium, des places voisines dans la classification périodique de Mendéléïev.
- d'autre part le diagramme d'équilibre Molybdène-Niobium (44), donné par la figure 41, laisse prévoir un comportement normal de ces thermocouples à fort pourcentage de Molybdène jusqu'à des températures de l'ordre de 2200°C, car il fait apparaître une phase solide continue (la ligne solidus passe par un minimum de 2345°C, pour une concentration pondérale en Molybdène d'environ 20 %).

Aussi, peut-on penser que les thermocouples d'alliages Molybdène-Niobium sont susceptibles de fournir des F.E.M. comparables à celles des alliages Tungstène-Rhénium puisque, de plus, les courbes $E_{mv} = f(T^{\circ}C)$ (Figure 6) des thermocouples composés par les couples des métaux purs respectifs sont sensiblement identiques.

L'élaboration de tels alliages pose des problèmes métallurgiques plus complexes que celle du Tungstène-Rhénium (45). Toutefois, on peut réaliser des fils de diverses compositions afin d'effectuer les étalonnages préalables dans le but de déterminer les compositions optima (F.E.M. la plus élevée et linéaire). Il est intéressant de noter que dans l'éventualité où le Molybdène pur vérifierait cette condition avec un alliage quelconque de Molybdène-Niobium, les thermocouples sous forme de gaine coaxiale (du type de la figure 7c) avec une âme en Molybdène-Niobium et la gaine en Molybdène, conviendraient parfaitement au repérage de la température des éléments combustibles d' UO_2 .

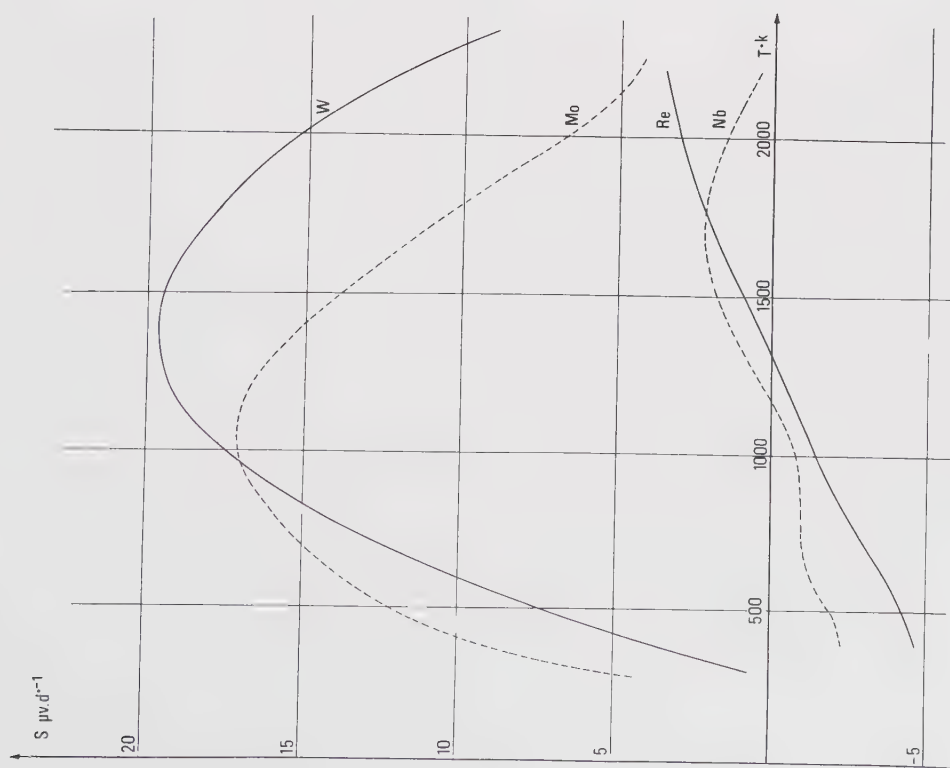


Figure 39 : Pouvoirs thermoélectriques absolus.

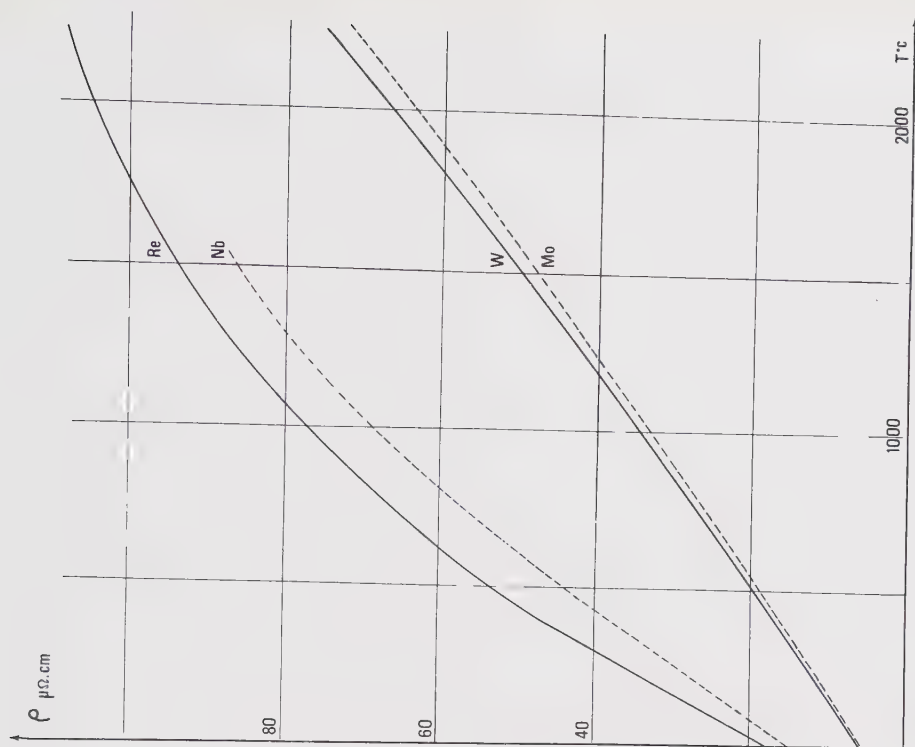


Figure 40 : Résistivités.

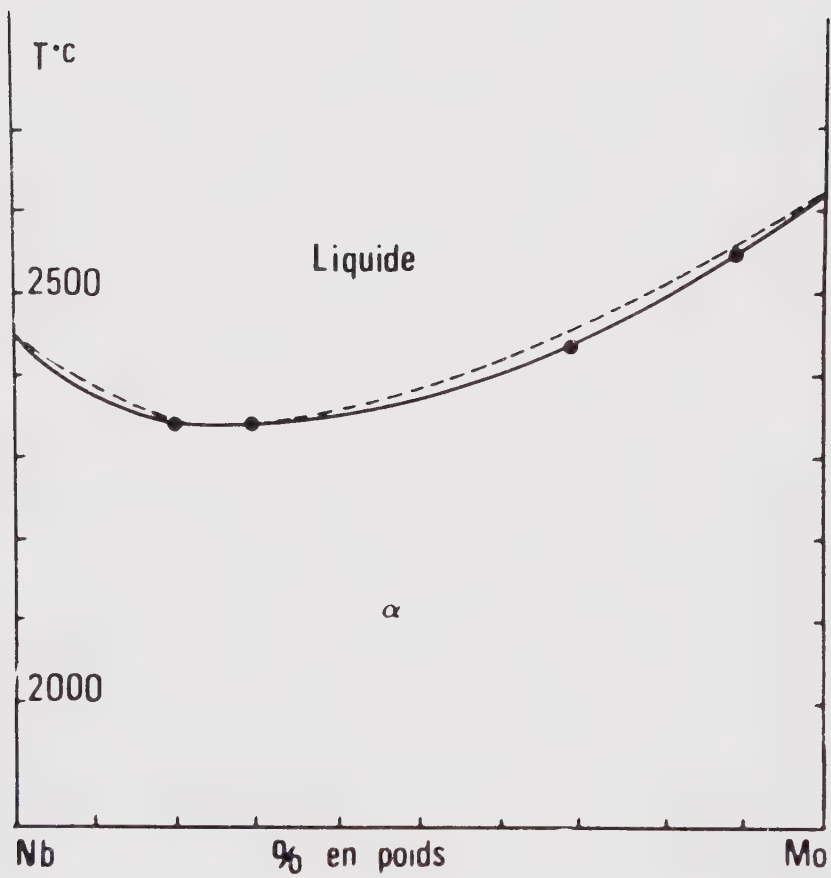


Figure 41 : Diagramme d'équilibre Mo - Nb.

TABLEAUX & COURBES D'ETALONNAGE MOYEN
DES THERMOCOUPLES D'ALLIAGES TUNGSTENE-RHENIUM

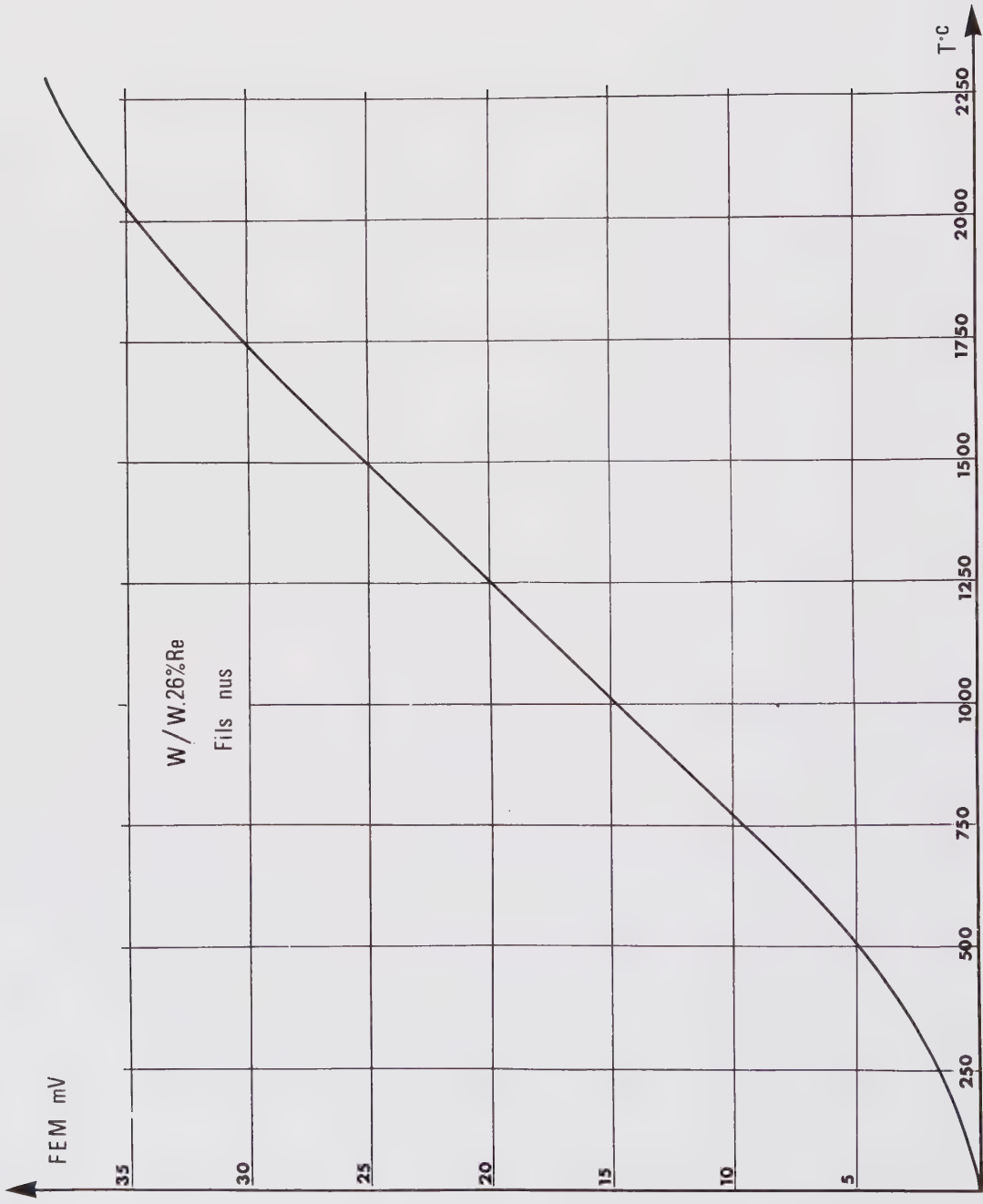
W./W. 26% Ré Fils nus

F.E.M. en mV

Référence : 0°C

T°C	0	100	200	300	400	500	600	700	800	900	1000	1100	T°C
0	0,000	0,410	1,120	2,100	3,365	4,820	6,610	8,600	10,670	12,710	14,740	16,790	0
5	0,015	0,440	1,160	2,160	3,440	4,905	6,700	8,710	10,775	12,810	14,840	16,900	5
10	0,030	0,465	1,200	2,220	3,505	4,990	6,800	8,810	10,880	12,915	14,940	17,005	10
15	0,050	0,495	1,245	2,280	3,575	5,075	6,905	8,915	10,980	13,015	15,045	17,105	15
20	0,070	0,525	1,285	2,340	3,640	5,160	7,005	9,015	11,085	13,115	15,145	17,210	20
25	0,090	0,555	1,325	2,400	3,710	5,250	7,100	9,120	11,190	13,215	15,250	17,315	25
30	0,110	0,585	1,370	2,460	3,780	5,330	7,200	9,220	11,290	13,315	15,350	17,415	30
35	0,130	0,620	1,415	2,520	3,850	5,420	7,300	9,320	11,395	13,420	15,450	17,520	35
40	0,150	0,650	1,460	2,580	3,915	5,500	7,400	9,420	11,495	13,520	15,550	17,625	40
45	0,170	0,685	1,505	2,640	3,985	5,590	7,500	9,525	11,600	13,620	15,655	17,730	45
50	0,190	0,720	1,550	2,700	4,050	5,680	7,600	9,630	11,700	13,720	15,760	17,830	50
55	0,210	0,755	1,600	2,765	4,125	5,765	7,700	9,735	11,800	13,820	15,860	17,940	55
60	0,235	0,790	1,660	2,830	4,200	5,860	7,800	9,840	11,900	13,920	15,965	18,040	60
65	0,255	0,830	1,715	2,900	4,280	5,950	7,900	9,940	12,000	14,025	16,070	18,145	65
70	0,280	0,870	1,770	2,965	4,355	6,045	8,000	10,045	12,105	14,125	16,170	18,250	70
75	0,300	0,910	1,825	3,030	4,430	6,140	8,100	10,150	12,205	14,230	16,275	18,350	75
80	0,320	0,950	1,880	3,100	4,510	6,230	8,200	10,250	12,305	14,330	16,380	18,455	80
85	0,345	0,990	1,935	3,165	4,585	6,325	8,300	10,360	12,405	14,435	16,485	18,560	85
90	0,370	1,035	1,990	3,230	4,660	6,420	8,400	10,460	12,505	14,535	16,585	18,660	90
95	0,390	1,080	2,050	3,300	4,700	6,510	8,500	10,565	12,610	14,640	16,690	18,765	95
100	0,410	1,120	2,100	3,365	4,820	6,610	8,600	10,670	12,710	14,740	16,790	18,870	100

T°C	1200	1300	1400	1500	1600	1700	1800	1900	2000	2100	2200	x	T°C
0	18,870	20,900	22,980	25,050	27,100	29,150	30,970	32,720	34,400	35,920	37,360	x	0
5	18,970	21,000	23,080	25,150	27,205	29,250	31,055	32,810	34,475	36,000	37,420	x	5
10	19,070	21,105	23,185	25,250	27,310	29,345	31,140	32,895	34,550	36,075	37,475	x	10
15	19,175	21,210	23,290	25,350	27,415	29,425	31,230	32,970	34,625	36,150	37,530	x	15
20	19,275	21,315	23,395	25,455	27,520	29,520	31,320	33,060	34,700	36,225	37,585	x	20
25	19,380	21,420	23,500	25,555	27,625	29,615	31,405	33,145	34,780	36,300	37,635	x	25
30	19,480	21,520	23,600	25,660	27,730	29,710	31,495	33,225	34,855	36,370	37,685	x	30
35	19,580	21,625	23,705	25,765	27,830	29,800	31,580	33,310	34,930	36,450	37,735	x	35
40	19,680	21,730	23,810	25,865	27,935	29,890	31,670	33,395	35,005	36,525	37,780	x	40
45	19,780	21,830	23,910	25,970	28,040	29,980	31,755	33,475	35,080	36,600	37,830	x	45
50	19,880	21,935	24,015	26,070	28,150	30,070	31,845	33,560	35,160	36,675	37,880	x	50
55	19,980	22,040	24,120	26,175	28,255	30,160	31,930	33,650	35,235	36,750	37,925	x	55
60	20,080	22,150	24,220	26,275	28,355	30,250	32,020	33,730	35,310	36,820	37,970	x	60
65	20,180	22,250	24,320	26,380	28,450	30,340	32,110	33,815	35,390	36,900	38,015	x	65
70	20,285	22,355	24,425	26,480	28,550	30,430	32,200	33,895	35,465	36,965	38,060	x	70
75	20,385	22,460	24,530	26,585	28,650	30,520	32,285	33,980	35,540	37,035	38,100	x	75
80	20,490	22,560	24,630	26,685	28,750	30,610	32,370	34,060	35,620	37,100	38,135	x	80
85	20,590	22,665	24,735	26,790	28,850	30,700	32,460	34,150	35,695	37,170	38,170	x	85
90	20,690	22,770	24,840	26,890	28,950	30,790	32,545	34,230	35,770	37,235	38,200	x	90
95	20,795	22,875	24,945	26,995	29,050	30,880	32,630	34,315	35,845	37,300	38,235	x	95
100	20,900	22,980	25,050	27,100	29,150	30,970	32,720	34,400	35,920	37,360	38,270	x	100



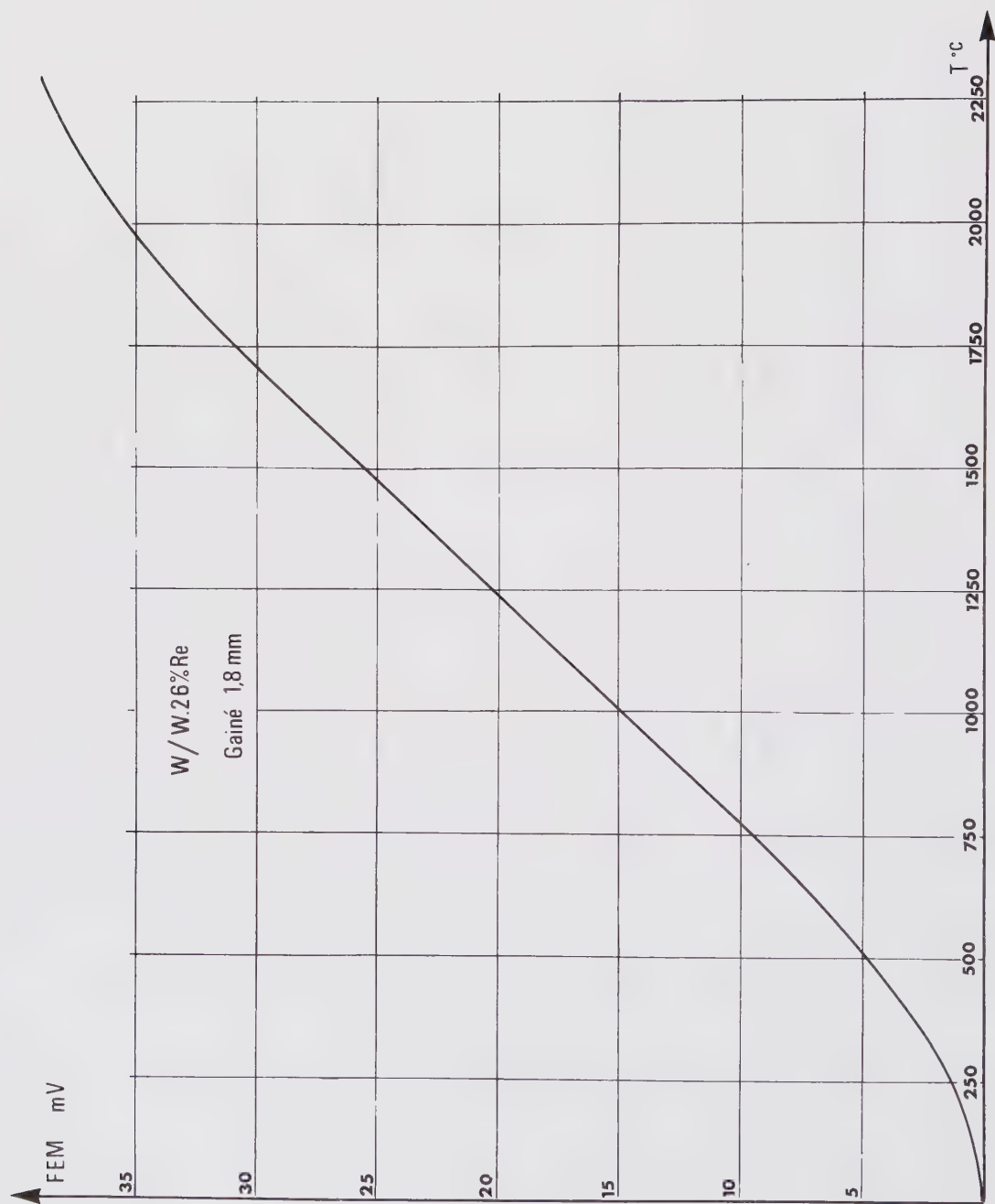
W./ W. 26% Re Gainé 1,8 mm

F.E.M. en mV

Référence : 0°C

T°C	0	100	200	300	400	500	600	700	800	900	1000	1100	T°C
0	0,000	0,275	0,850	1,910	3,240	4,770	6,480	8,480	10,550	12,670	14,810	16,950	0
5	0,005	0,295	0,895	1,975	3,310	4,850	6,575	8,595	10,655	12,775	14,920	17,055	5
10	0,010	0,315	0,945	2,040	3,380	4,930	6,670	8,700	10,760	12,880	15,030	17,160	10
15	0,020	0,335	0,990	2,105	3,455	5,015	6,765	8,800	10,865	12,990	15,135	17,270	15
20	0,030	0,360	1,040	2,170	3,525	5,100	6,855	8,900	10,970	13,100	15,240	17,375	20
25	0,040	0,380	1,090	2,230	3,600	5,180	6,950	9,005	11,075	13,210	15,350	17,485	25
30	0,050	0,405	1,135	2,300	3,670	5,265	7,045	9,105	11,180	13,315	16,460	17,590	30
35	0,065	0,430	1,185	2,365	3,740	5,350	7,140	9,210	11,285	13,425	16,565	17,700	35
40	0,075	0,455	1,230	2,425	3,815	5,430	7,235	9,315	11,390	13,530	16,670	17,810	40
45	0,090	0,480	1,280	2,490	3,885	5,515	7,330	9,420	11,495	13,640	16,780	17,915	45
50	0,100	0,510	1,330	2,555	3,960	5,600	7,420	9,520	11,600	13,750	16,880	18,020	50
55	0,115	0,535	1,390	2,625	4,035	5,685	7,525	9,625	11,710	13,855	16,990	18,120	55
60	0,130	0,560	1,445	2,695	4,120	5,775	7,635	9,725	11,820	14,070	17,100	18,230	60
65	0,145	0,590	1,500	2,765	4,200	5,865	7,740	9,830	11,925	14,175	17,205	18,335	65
70	0,160	0,630	1,560	2,830	4,280	5,950	7,850	9,930	12,030	14,280	17,310	18,445	70
75	0,180	0,655	1,620	2,900	4,360	6,040	7,960	10,035	12,130	14,390	17,420	18,550	75
80	0,200	0,690	1,680	2,970	4,440	6,125	8,065	10,140	12,230	14,500	17,525	18,660	80
85	0,220	0,725	1,735	3,035	4,520	6,215	8,170	10,240	12,335	14,610	17,630	18,765	85
90	0,235	0,765	1,795	3,100	4,600	6,300	8,280	10,345	12,440	14,720	17,735	18,875	90
95	0,255	0,805	1,850	3,170	4,685	6,390	8,385	10,450	12,545	14,830	17,845	18,980	95
100	0,275	0,850	1,910	3,240	4,770	6,480	8,490	10,550	12,670	14,940	17,950	19,090	100

T°C	1200	1300	1400	1500	1600	1700	1800	1900	2000	2100	2200	-	T°C
0	19,090	21,260	23,410	25,560	27,730	29,895	31,920	33,750	35,450	36,900	38,020	x	0
5	19,200	21,370	23,520	25,675	27,840	30,000	32,010	33,835	35,525	36,965	38,070	x	5
10	19,310	21,480	23,625	25,780	27,945	30,100	32,105	33,920	35,600	37,020	38,120	x	10
15	19,420	21,585	23,730	25,890	28,055	30,210	32,200	34,010	35,670	37,080	38,165	x	15
20	19,530	21,690	23,840	25,995	28,165	30,315	32,300	34,100	35,750	37,140	38,215	x	20
25	19,635	21,800	23,950	26,100	28,275	30,420	32,395	34,185	35,825	37,200	38,260	x	25
30	19,745	21,905	24,055	26,210	28,380	30,525	32,490	34,270	35,900	37,260	38,310	x	30
35	19,855	22,015	24,165	26,320	28,490	30,630	32,585	34,360	35,970	37,320	38,360	x	35
40	19,965	22,120	24,270	26,425	28,600	30,740	32,680	34,450	36,040	37,380	38,410	x	40
45	20,070	22,235	24,380	26,530	28,710	30,845	32,775	34,535	36,115	37,440	38,460	x	45
50	20,180	22,340	24,490	26,640	28,820	30,950	32,870	34,620	36,200	37,500	38,510	x	50
55	20,290	22,450	24,600	26,745	28,925	31,050	32,960	34,705	36,275	37,560	38,555	x	55
60	20,400	22,555	24,705	26,850	29,030	31,145	33,045	34,790	36,345	37,605	38,600	x	60
65	20,510	22,660	24,810	26,965	29,140	31,240	33,130	34,870	36,415	37,655	38,640	x	65
70	20,620	22,770	24,920	27,075	29,250	31,335	33,220	34,955	36,485	37,710	38,685	x	70
75	20,725	22,875	25,030	27,180	29,355	31,435	33,310	35,040	36,555	37,760	38,730	x	75
80	20,830	22,980	25,135	27,290	29,460	31,530	33,395	35,120	36,625	37,810	38,775	x	80
85	20,940	23,085	25,245	27,400	29,570	31,625	33,485	35,200	36,695	37,860	38,820	x	85
90	21,050	23,195	25,350	27,510	29,685	31,720	33,570	35,285	36,765	37,915	38,865	x	90
95	21,155	23,300	25,460	27,620	29,785	31,820	33,660	35,370	36,830	37,965	38,910	x	95
100	21,260	23,410	25,560	27,730	29,895	31,920	33,750	35,450	36,900	38,020	38,950	x	100



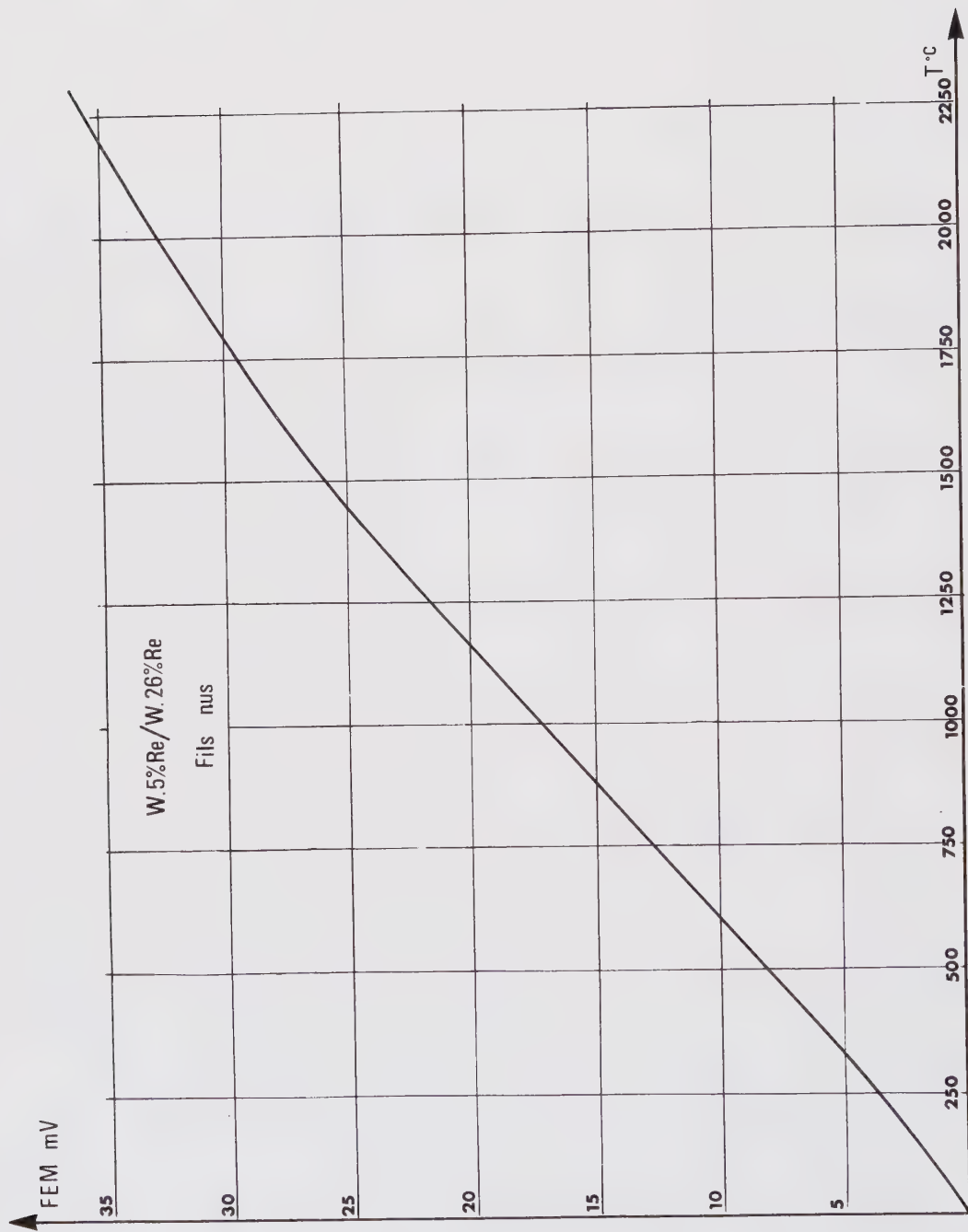
W. 5% Re / W. 26 % Re Fils nus

F.E.M. en mV

Référence : 0°C

T°C	0	100	200	300	400	500	600	700	800	900	1000	1100	T°C
0	0,000	1,370	2,870	4,550	6,360	8,180	9,980	11,780	13,580	15,380	17,180	18,985	0
5	0,065	1,460	2,950	4,640	6,455	8,270	10,070	11,870	13,670	15,270	17,270	19,070	5
10	0,130	1,515	3,035	4,730	6,545	8,360	10,160	11,960	13,760	15,560	17,360	19,160	10
15	0,200	1,585	3,115	4,820	6,635	8,450	10,250	12,050	13,850	15,650	17,450	19,250	15
20	0,270	1,660	3,200	4,910	6,725	8,540	10,340	12,140	13,940	15,740	17,540	19,340	20
25	0,340	1,730	3,280	5,000	6,895	8,630	10,430	12,230	14,030	15,830	17,630	19,430	25
30	0,405	1,805	3,360	5,090	6,905	8,720	10,520	12,320	14,120	15,920	17,720	19,515	30
35	0,475	1,880	3,440	5,180	6,995	8,810	10,610	12,410	14,210	16,010	17,810	19,600	35
40	0,540	1,950	3,525	5,270	7,085	8,900	10,700	12,500	14,300	16,100	17,900	19,690	40
45	0,610	2,025	3,610	5,365	7,175	8,990	10,790	12,590	14,390	16,190	17,990	19,780	45
50	0,680	2,100	3,690	5,455	7,265	9,080	10,880	12,680	14,480	16,280	18,080	19,870	50
55	0,750	2,175	3,780	5,545	7,355	9,170	10,970	12,770	14,570	16,370	18,170	19,960	55
60	0,820	2,250	3,865	5,640	7,455	9,260	11,060	12,860	14,660	16,460	18,260	20,045	60
65	0,885	2,330	3,950	5,730	7,535	9,350	11,150	12,950	14,750	16,550	18,350	20,135	65
70	0,955	2,405	4,035	5,820	7,625	9,440	11,240	13,040	14,840	16,640	18,440	20,225	70
75	1,025	2,485	4,120	5,910	7,715	9,530	11,330	13,130	14,930	16,730	18,530	20,310	75
80	1,090	2,560	4,200	6,000	7,810	9,620	11,420	13,220	15,020	16,820	18,620	20,400	80
85	1,160	2,635	4,290	6,090	7,900	9,710	11,510	13,310	15,110	16,910	18,710	20,490	85
90	1,230	2,715	4,375	6,180	7,990	9,800	11,600	13,400	15,200	17,000	18,800	20,580	90
95	1,300	2,790	4,460	6,275	8,085	9,890	11,690	13,490	15,290	17,090	18,890	20,665	95
100	1,370	2,870	4,550	6,360	8,180	9,980	11,780	13,580	15,380	17,180	18,985	20,755	100

T°C	1200	1300	1400	1500	1600	1700	1800	1900	2000	2100	2200	x	T°C
0	20,755	22,540	24,300	25,900	27,370	28,765	30,100	31,470	32,765	34,030	35,250	x	0
5	20,845	22,630	24,375	25,975	27,440	28,830	30,170	31,535	32,830	34,090	35,305	x	5
10	20,930	22,720	24,455	26,050	27,510	28,900	30,240	31,600	32,900	34,150	35,360	x	10
15	21,020	22,810	24,535	26,125	27,580	28,965	30,310	31,665	32,960	34,215	35,415	x	15
20	21,115	22,895	24,620	26,200	27,650	29,030	30,375	31,730	33,025	34,280	35,470	x	20
25	21,200	22,985	24,700	26,275	27,725	29,100	30,445	31,795	33,090	34,340	35,520	x	25
30	21,290	23,070	24,775	26,350	27,795	29,165	30,510	31,860	33,160	34,400	35,575	x	30
35	21,380	23,160	24,860	26,425	27,865	29,230	30,580	31,925	33,220	34,465	35,630	x	35
40	21,470	23,250	24,940	26,500	27,940	29,295	30,650	31,990	33,285	34,525	35,685	x	40
45	21,560	23,335	25,020	26,575	28,010	29,365	30,720	32,055	33,350	34,590	35,735	x	45
50	21,650	23,425	25,100	26,650	28,080	29,430	30,785	32,120	33,415	34,650	35,785	x	50
55	21,735	23,515	25,175	26,720	28,150	29,495	30,850	32,185	33,485	34,710	35,840	x	55
60	21,825	23,600	25,255	26,790	28,220	29,560	30,920	32,250	33,540	34,770	35,890	x	60
65	21,915	23,680	25,335	26,870	28,285	29,630	30,990	32,310	33,600	34,830	35,940	x	65
70	22,005	23,775	25,415	26,940	28,350	29,700	31,060	32,375	33,660	34,890	35,990	x	70
75	22,095	23,865	25,500	27,010	28,420	29,765	31,180	32,440	33,720	34,950	36,040	x	75
80	22,180	23,950	25,580	27,080	28,490	29,830	31,200	32,510	33,780	35,010	36,085	x	80
85	22,270	24,040	25,660	27,150	28,560	29,900	31,265	32,570	33,845	35,070	36,135	x	85
90	22,360	24,130	25,740	27,220	28,630	29,965	31,335	32,640	33,905	35,130	36,185	x	90
95	22,450	24,210	25,820	27,295	28,695	30,035	31,400	32,700	33,970	35,190	36,230	x	95
100	22,540	24,300	25,900	27,370	28,765	30,100	31,470	32,765	34,030	35,250	36,280	x	100



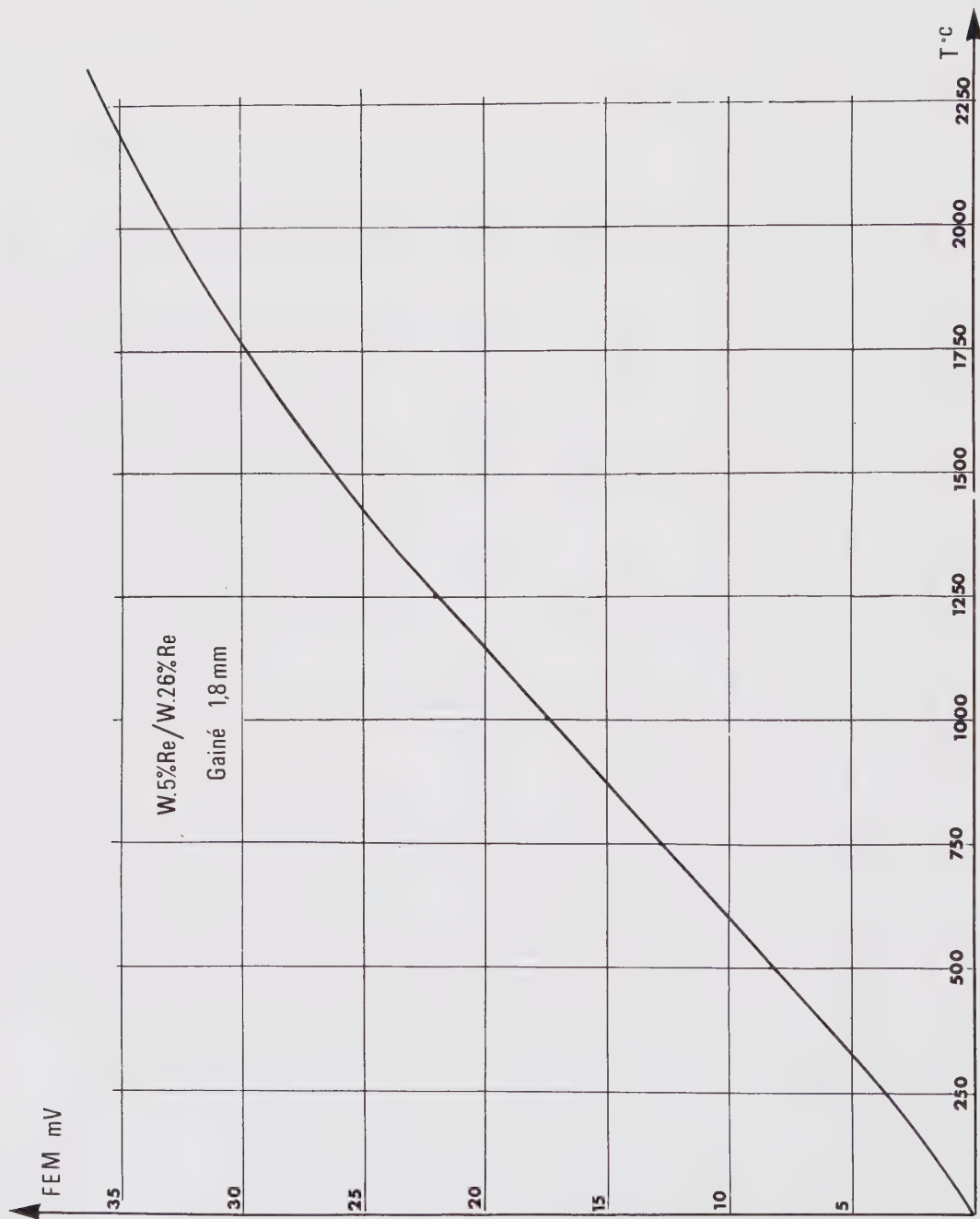
W.5% Re / W.26% Re Gainé 1,8 mm

F.E.M. en mV

Référence : 0°C

T°C	0	100	200	300	400	500	600	700	800	900	1000	1100	T°C
0	0,000	1,250	2,810	4,600	6,440	8,275	10,115	11,950	13,790	15,630	17,465	19,305	0
5	0,060	1,320	2,895	4,690	6,530	8,365	10,205	12,040	13,880	15,720	17,555	19,395	5
10	0,115	1,390	2,985	4,785	6,625	8,460	10,300	12,135	13,975	15,815	17,650	19,490	10
15	0,170	1,460	3,075	4,875	6,715	8,550	10,390	12,225	14,065	15,905	17,740	19,580	15
20	0,225	1,535	3,165	4,970	6,810	8,645	10,485	12,320	14,160	16,000	17,835	19,675	20
25	0,280	1,610	3,255	5,060	6,900	8,735	10,575	12,410	14,250	16,090	17,925	19,765	25
30	0,340	1,685	3,345	5,150	6,990	8,825	10,665	12,500	14,340	16,180	18,015	19,855	30
35	0,400	1,760	3,435	5,245	7,085	8,920	10,760	12,595	14,435	16,275	18,110	19,950	35
40	0,460	1,840	3,525	5,335	7,175	9,010	10,850	12,685	14,525	16,365	18,200	20,040	40
45	0,520	1,920	3,615	5,430	7,270	9,100	10,945	12,780	14,620	16,460	18,295	20,135	45
50	0,585	2,000	3,705	5,520	7,360	9,195	11,035	12,870	14,710	16,550	18,385	20,225	50
55	0,650	2,080	3,795	5,610	7,450	9,285	11,125	12,960	14,800	16,640	18,475	20,315	55
60	0,715	2,160	3,885	5,705	7,545	9,380	11,220	13,055	14,895	16,735	18,570	20,410	60
65	0,780	2,240	3,970	5,795	7,635	9,470	11,310	13,145	14,985	16,825	18,660	20,510	65
70	0,845	2,320	4,060	5,890	7,730	9,565	11,405	13,240	15,080	16,920	18,755	20,605	70
75	0,910	2,400	4,150	5,980	7,820	9,655	11,495	13,330	15,170	17,010	18,845	20,690	75
80	0,975	2,480	4,240	6,070	7,910	9,745	11,585	13,420	15,260	17,100	18,935	20,780	80
85	1,040	2,560	4,330	6,165	8,005	9,840	11,680	13,515	15,355	17,195	19,030	20,875	85
90	1,110	2,640	4,420	6,255	8,095	9,930	11,770	13,605	15,445	17,285	19,120	20,965	90
95	1,180	2,725	4,510	6,350	8,190	10,025	11,865	13,700	15,540	17,380	19,215	21,055	95
100	1,250	2,810	4,600	6,440	8,275	10,115	11,950	13,790	15,630	17,465	19,305	21,145	100

T°C	1200	1300	1400	1500	1600	1700	1800	1900	2000	2100	2200	x	T°C
0	21,145	22,890	24,500	26,060	27,540	28,965	30,330	31,635	32,880	34,055	35,160	x	0
5	21,235	22,970	24,580	26,135	27,610	29,035	30,395	31,700	32,940	34,110	35,210	x	5
10	21,325	23,050	24,660	26,210	27,685	29,105	30,465	31,765	33,000	34,170	35,265	x	10
15	21,420	23,135	24,740	26,285	27,755	29,175	30,530	31,825	33,060	34,225	35,315	x	15
20	21,510	23,215	24,820	26,360	27,830	29,245	30,600	31,890	33,120	34,285	35,370	x	20
25	21,600	23,295	24,900	26,435	27,900	29,315	30,665	31,955	33,180	34,340	35,420	x	25
30	21,690	23,375	24,980	26,510	27,970	29,385	30,730	32,015	33,240	34,395	35,470	x	30
35	21,780	23,455	25,060	26,585	28,040	29,450	30,795	32,080	33,300	34,450	35,520	x	35
40	21,870	23,540	25,135	26,655	28,115	29,520	30,860	32,140	33,360	34,510	35,570	x	40
45	21,960	23,620	25,215	26,720	28,185	29,585	30,925	32,205	33,420	34,565	35,620	x	45
50	22,050	23,700	25,295	26,805	28,255	29,655	30,990	32,265	33,480	34,620	35,670	x	50
55	22,135	23,780	25,370	26,880	28,325	29,725	31,055	32,325	33,540	34,675	35,720	x	55
60	22,220	23,860	25,450	26,955	28,395	29,790	31,120	32,390	33,595	34,730	35,765	x	60
65	22,310	23,940	25,525	27,025	28,470	29,860	31,185	32,450	33,655	34,780	35,815	x	65
70	22,395	24,020	25,605	27,100	28,540	29,925	31,250	32,515	33,710	34,835	35,860	x	70
75	22,480	24,100	25,680	27,175	28,610	29,995	31,315	32,575	33,770	34,890	35,910	x	75
80	22,560	24,180	25,755	27,250	28,680	30,060	31,380	32,635	33,825	34,945	35,995	x	80
85	22,645	24,260	25,830	27,320	28,750	30,130	31,445	32,695	33,885	35,000	36,000	x	85
90	22,725	24,340	25,910	27,395	28,825	30,195	31,505	32,760	33,940	35,050	36,050	x	90
95	22,810	24,420	25,985	27,465	28,895	30,265	31,570	32,820	34,000	35,105	36,095	x	95
100	22,890	24,500	26,060	27,540	28,965	30,330	31,635	32,880	34,055	35,160	36,140	x	100



OUVRAGES GENERAUX

- 1 - Herzfeld - Temperature. Its measurements and control in Science and Industry
 - 2 - Jouguet M. - Traité d'Electricité Théorique
 - 3 - Nye J.F. - Propriétés Physiques des Cristaux
 - 4 - Ziman J.M. - Principles of theory of solids
 - 5 - Hampel - Rare Metals Handbook
 - 6 - Ribaud - Mesure des températures
-
- 7 - Mott N.F. - Proc. Roy. Soc. A 156 (1936)
 - 8 - Domenicalli C.A. - Phy. Rev. 112. 6 (1958)
 - 9 - Caldwell F.R. - Nat. Bur. of Stand. (1962)
 - 10 - Wilhelm H.A., Svec H.J., Snow A.I., Danne A.H. - AECD 3275 (1948)
 - 11 - Davies D.A. - Jou. Sci. Inst. 37 (1960)
 - 12 - Sims C.T., Gaines G.B., Jaffee R.I. - Rev. Sci. Inst. 30.2 (1959)
 - 13 - Lachman J.C., Mc Gurty - Symposium of Rhenium (1960)
 - 14 - Nadler M.R., Kempter C.P. - Rev. Sci. Inst. 32.1 (1961)
 - 15 - Kuhlman W.C. - ASD. TDR. 63.233 (1963)
 - 16 - Thomas D.B. - Jou. Res. Nat. Bur. of Stand. 67 C4 (1963)
 - 17 - Gross P.H., Gugliotta J., Krysiak K.F., Gross L.B. - ISA Trans. 3.4 (1964)
 - 18 - Thielke N.R., Shepard R.L. - High Temp. Seminar Oak Ridge (1959)
 - 19 - Sanders V.D. - Rev. Sci. Inst. 29. 917 (1958)
 - 20 - Dickinson J.M., Richardson L.S. - Trans. ASM (1958)
 - 21 - Port J.H. - Metals for the Space Age. Plansee Proc. pg 613 (1964)
 - 22 - Kieffer B.F., Root G.S., Worcester S.A. - idem 21 pg 571
 - 23 - Andelin R.L., Knight J.D., Kahn M. - Tran.Met. Soc. AIME 233 (1965)
 - 24 - Kelly N.J., Johnston W.W., Baumann C.D. - idem 1 pg 265

- 25 - Browning W.E., Miller C.E. - idem 1 pg 271
- 26 - Ehringer H. - EUR/C/4289. 2 (1962)
- 27 - Rapport GEMP 39A 57104 (1964)
- 28 - Shinault L.H., Mc Grath T.F. - ARS Jou. (1961)
- 29 - Lachman J.C. - Hoskins Manuf. Co. (1961)
- 30 - Davoine F., Schley R., Villamayor M. - Rapport CEA R 2481 (1964)
- 31 - Rapport CEA R 2537 (1965)
- 32 - Van E.Wood - Battelle Mem. Inst. (1965)
- 33 - Hall D.N. - Int. Symp. In pile Irrad. Equip.-& Tech. Harwell 1966
TF 6
- 34 - Billington, Crawford - Radiation Damage in Solids. Ed. Princenton.
- 35 - Elston J. - Nuclear Power (1960)
- 36 - Rapport GEMP 38 A 57063 19 (1964)
- 37 - Rapport GEMP 34 A 57063 15 (1964)
- 38 - Harvey A. - NEI 153 AEC (1961)
- 39 - Hawkings R.C. - CRL 85 AEC (1964)
- 40 - Rapport CEA DM/CS/CC/3952 (1966)
- 41 - Cusak N., Kendall P. - Res. Notes (1958)
- 42 - Raag V., Howger H.V. - Jou. App. Phy. 36. 6 (1965)
- 43 - Stephenson R.L. - ORNL 3670 (1965)
- 44 - Eremenko V.N. - CMIC Report 152-28 (1961)
- 45 - Catteral J.A., Barker S.M. - idem 21 pg 577.

TABLE DES MATIERES

INTRODUCTION

PREMIERE PARTIE

A. RAPPELS THEORIQUES SUR LA THERMOELECTRICITE

I -Les effets thermoélectriques.....	5
II -Interprétation des effets thermoélectriques. Relations de Thomson.....	6
III-Lois des effets thermoélectriques.....	9
IV -Principes d'utilisation des thermocouples.....	10

B. LES THERMOCOUPLES

I -Choix des thermocouples.....	13
II -Les thermocouples de métaux et alliages réfractaires.....	14
III-Les thermocouples d'alliages Tungstène-Rhénium.....	17

DEUXIEME PARTIE

ETUDE DES THERMOCOUPLES D'ALLIAGES TUNGSTENE-RHENIUM "HORS PILE"

A. ETUDES PREALABLES

I -Dispositif expérimental.....	23
II -Etalonnages statistiques. Dispersion. Courbes d'étalonnage moyen.....	32
III-Stabilité au cours du temps.....	38
IV -Stabilité dans les gaz.....	39

B. ETUDES COMPLEMENTAIRES

I -Dispositif expérimental.....	41
II -Influence des chocs thermiques.....	42
III-Mesure des temps de réponse.....	50

C. ETUDE DE LA COMPENSATION DE SOUDURE FROIDE

I -Dispositif expérimental.....	56
II -Etude des alliages.....	57
III-Comparaison avec les fils X-Y.....	58
IV -Conclusion.....	61

TROISIEME PARTIE

ETUDE DES THERMOCOUPLES D'ALLIAGES TUNGSTENE-RHENIUM "EN PILE"

A. DISPOSITIF EXPERIMENTAL

I -La pile SILOE. Le four HEBE.....	66
II -Le four d'étalonnage TETARD.....	67
III-Les gaines porte-thermocouples.....	72
IV -Les dispositifs annexes.....	76

B. EXPERIMENTATION

I -Généralités.....	77
II -Les préétalonnages.....	79
III-Les irradiations.....	80
IV -Etalonnages après irradiation.....	82

C. RESULTATS OBTENUS

I -Remarques préliminaires.....	83
II -Enregistrements pendant les irradiations.....	84
III-Les courbes d'écart.....	87
IV -Conclusion.....	88

D. FACTEURS D'INFLUENCE

I -Les transmutations.....	89
II -Perturbation du réseau.....	93
III-Autres facteurs d'influence.....	94

ANNEXE - Comportement des thermocouples d'alliages réfractaires sous irradiation, en présence d' UO_2	96
--	----

CONCLUSION.....	99
-----------------	----

TABLEAUX & COURBES D'ETALONNAGE MOYEN DES THERMOCOUPLES D'ALLIAGES TUNGSTENE-RHENIUM.....	103
--	-----

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES.....	113
----------------------------------	-----

DEUXIEME THESE

Propositions données par la Faculté

LA DOUBLE RESONANCE PARAMAGNETIQUE ELECTRONIQUE ET NUCLEAIRE
(Méthode E.N.D.O.R.)

Vu :

Les Membres du Jury
MM. Ch. EYRAUD
F. DAVOINE
P. PINARD
F. ROSSILLON
P. THOME

Vu et approuvé

Le Doyen de la Faculté des Sciences

J. BRACONNIER

Vu et accordé

le permis d'imprimer :
Lyon, le 3 décembre 1966

Le Recteur,
Président du Conseil
de l'Université,

P. LOUIS

